

Diseño y construcción de una autoclave para crecimientos de monocristales por el método hidrotermal

Carlos Arencibia del Risco, Rolando Rodríguez Macías, Elsa Hernández, Juan Fuentes Betancourt, Instituto de Materiales y Reactivos para la Electrónica (IMRE), Universidad de La Habana.

RESUMEN

Se diseñó y construyó una autoclave investigativa de laboratorio para realizar crecimientos de cristales por el método hidrotermal. La misma es capaz de soportar altas temperaturas y presiones y es regulada por un sistema computarizado.

ABSTRACT

A research autoclave to grow crystals by the hydrothermal method was designed and constructed. Being able to resist high temperatures and pressures and it is regulated by a computerized system.

INTRODUCCIÓN

El cuarzo monocristalino tiene gran importancia en la fabricación de diferentes e importantes dispositivos ópticos y electrónicos. El mismo no abunda en la naturaleza, lo que hace necesario el crecimiento de monocristales sintéticos a partir del mineral de cuarzo.

El método utilizado para el crecimiento de monocristales sintéticos de cuarzo es el hidrotermal, el cual es una variante del crecimiento por soluciones [1-2]. Con la utilización de altas presiones, presencia de soluciones alcalinas y altas temperaturas, se logra disminuir consi-

derablemente la solubilidad del cuarzo y de esta forma se hace posible la obtención de monocristales [3-5].

Para realizar el crecimiento se requiere de un equipo que debe soportar altas presiones, temperaturas relativamente elevadas y además no corroerse en presencia de soluciones alcalinas; a este equipo se le denomina autoclave. Diversos estudios se han realizado en cuanto al diseño y construcción del mismo así como de su sellaje [6-10].

Con el objetivo de disponer de un equipo que nos permitiera emprender el estudio del crecimiento hidrotermal de monocristales sintéticos de cuarzo, se diseñó y construyó una autoclave de laboratorio capaz de trabajar en el régimen requerido.

DESARROLLO

Nos propusimos construir una autoclave con cámara interior de 50 mm de diámetro y 720 mm de longitud, así como que soportara una presión interna de 2000 Kgf/cm², a una temperatura de trabajo comprendida entre los 300 - 400 °C, teniendo en cuenta que el crecimiento debía producirse en un medio básico.

La autoclave consiste en una cámara cilíndrica de fuertes paredes dividida en dos regiones por un diafragma. La Figura 1 muestra un esquema del diseño. La región inferior o de disolución se encuentra rodeada por un horno cilíndrico y la región superior o de cristalización por otro horno independiente, con los cuales se establece un gradiente de temperatura entre ambas regiones. Cada zona lleva dispuesto un termopar de cromel-alumel para el registro de la temperatura. Además, cuenta con un soporte para las semillas y una cesta para el nutriente, o sea, el mineral de cuarzo policristalino de partida.

En la región del diafragma, las regiones de cristalización y disolución se encuentran aisladas térmicamente. Alrededor de la autoclave se dispusieron alerones de disipación térmica sostenidos por una brida. Este dispositivo favorece establecer el gradiente térmico.

El diafragma se mantiene sujeto al soporte de las semillas y admite ser intercambiable, disponiéndose de un juego de estos con orificios horadados entre 5 -8 % del total de su área.

Para el sello de la autoclave se seleccionó el diseño Bridgman modificado [6], pues es capaz de soportar presiones por encima de los 6000 Kgf/cm².

El diseño de construcción fue realizado bajo los criterios de la ASME, una sociedad de prestigio internacional dedicada a elaborar las Normas de construcción de recipientes de presión; también se utilizó

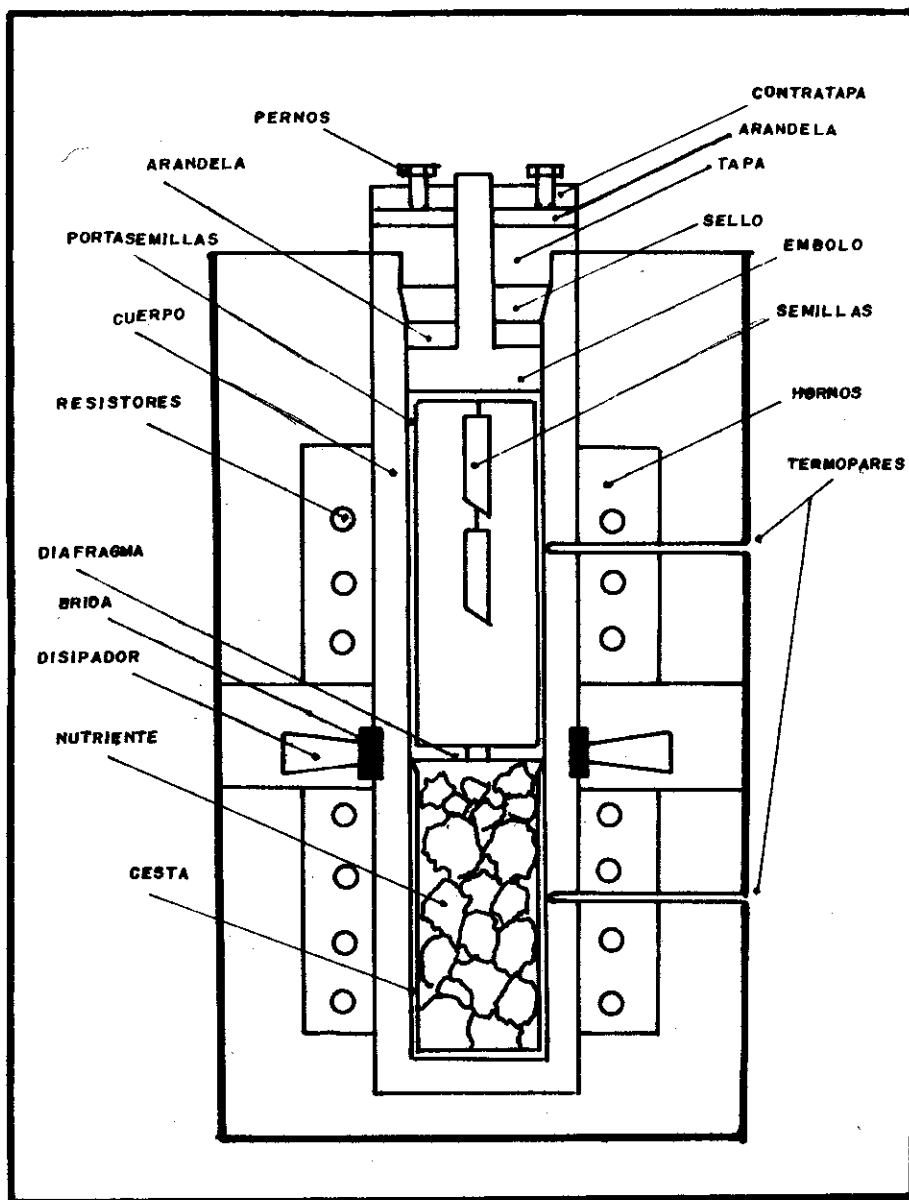


Figura 1. Esquema de la autoclave construida.

el criterio de Haman recomendado por Laudise, constructor de la primera planta piloto para el crecimiento de cuarzo sintético.

Se utilizó la aleación 1X17H2 por ser termoresistente y termorrefractaria, con resistencia a la tracción de 11000 kgf/cm^2 , límite de fluencia de 800 kgf/cm^2 y un 10 % de elongación [11].

Los hornos tabulares se construyeron sobre moldes de cerámica, con suficiente recubrimiento aislante dispuesto de tal forma que contribuyera a obtener el perfil de temperatura deseado.

Se realizaron estudios del perfil de temperatura disponiendo termopares interiores respectivamente en las zonas de disolución y cristalización de la autoclave. La Figura 2 muestra el perfil de temperatura.

Posteriormente se estudió y estableció la correspondencia en la medición de la temperatura con termopares dispuestos en el cuerpo de la autoclave. A partir de entonces resultó mucho más simple el diseño de la tapa de la autoclave al ser innecesario introducir los termopares interiormente a través de la misma.

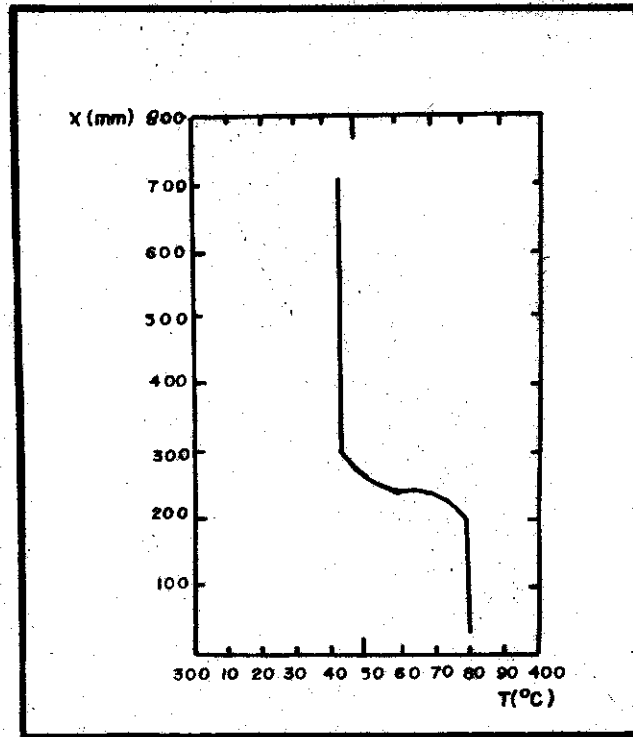


Figura 2. Perfil de temperatura.

Este perfil puede ser modificado fácilmente mediante cualquiera de las siguientes alternativas o en combinación de ellas:

- Variando la potencia de alimentación eléctrica a los hornos.
- Con desplazamientos relativos en la posición de ambos hornos.
- Variando el aislamiento térmico propio de los hornos.

De esta forma, pueden realizarse variaciones sin mucha dificultad del gradiente de temperatura entre ambas regiones de la autoclave, en el caso de que le sea difícil al sistema de control de la temperatura establecerlo.

La Figura 3 muestra el sistema de control de la temperatura utilizado, diseñado sobre la base de una pequeña computadora de 64 K Toshiba HX-10D acoplada a un bloque de control de la alimentación regulado por tiristores a través de una interfaz. Los datos de los distintos parámetros del crecimiento son introducidos a través del teclado alfanumérico y el

proceso se monitorea en una pantalla de TV. En el rango de trabajo el control aprecia variaciones en la temperatura de ± 2 °C. Si bien esta precisión no resulta totalmente satisfactoria, la experiencia demostró la posibilidad de ejecutar trabajos de crecimientos bajo la misma.

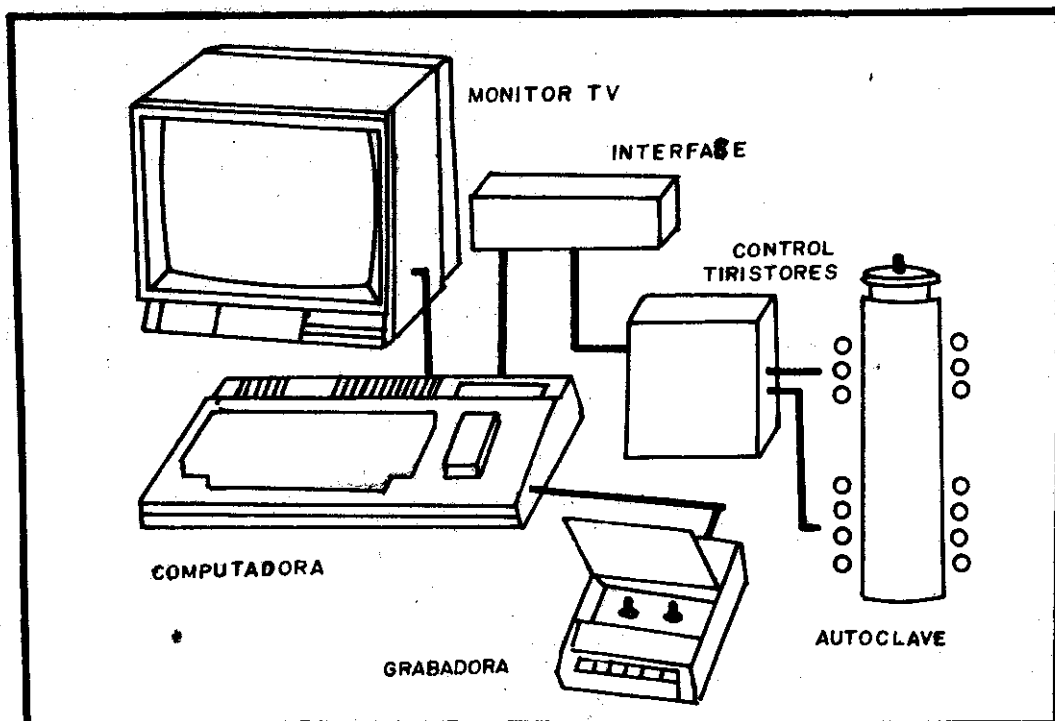


Figura 3. Esquema del sistema de control de temperatura de la autoclave.

En nuestro sistema, esta precisión se encuentra limitada por el conversor analógico-digital de 8 bit utilizado. Esta deficiencia puede ser rápidamente mejorada con la utilización de un conversor de mayor número de bit de resolución.

En el programa de ejecución empleado se estableció un régimen de calentamiento como el que muestra la Figura 4. El período de crecimiento se dividió en 5 intervalos. En el intervalo t_0-t_1 se eleva simultáneamente la temperatura de ambos hornos desde la temperatura ambiente hasta el punto t_1T_1 correspondiente a la temperatura de cristalización deseada. La experiencia demuestra la conveniencia de esta forma inicial de calentamiento para evitar inversiones del gradiente de temperatura o gradientes inicialmente indeseables que afecten la semilla usada en el crecimiento. En el intervalo t_1-t_2 el horno de la zona de disolución alcanza su temperatura de trabajo. En el intervalo t_2-t_3 se establece el gradiente de temperatura deseado en forma estable. Opcionalmente pueden utilizarse los intervalos de enfriamiento t_3-t_4 y t_4-t_5 pero la experiencia ha dictado que el sistema puede dejarse enfriar libremente.

Este programa de trabajo nos resulta muy fiable y cómodo de operar, a diferencia de programas elaborados en otros intentos [12].

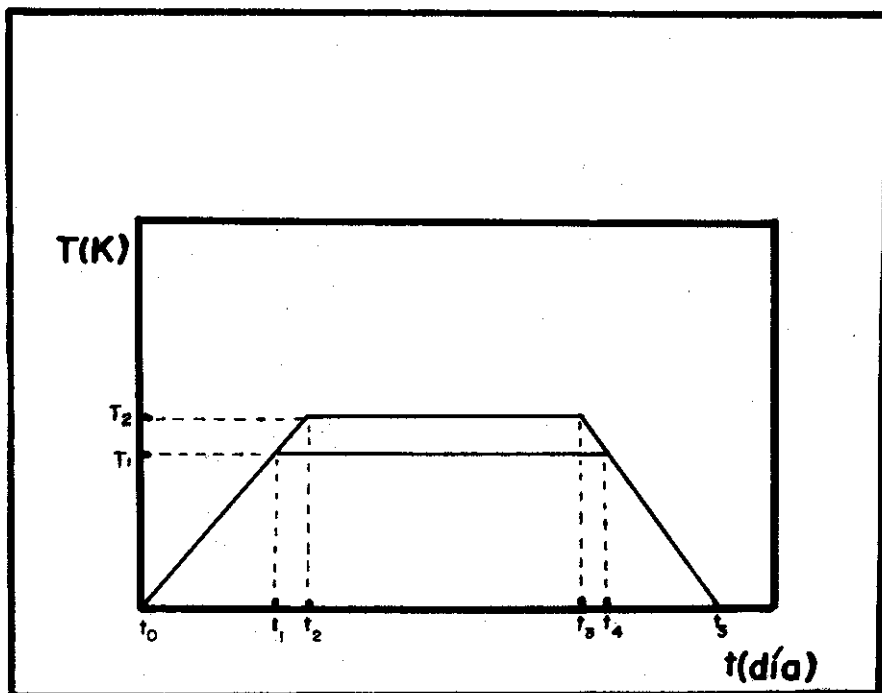


Figura 4. Régimen de calentamiento de la autoclave.

El volumen de trabajo de la autoclave es de un litro y como se dijo anteriormente, permite con facilidad realizar variaciones en el gradiente de temperatura entre las zonas de disolución y cristalización. La autoclave puede trabajar continuamente a $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ y 2000 kgf/cm^2 de presión.

Luego de varios experimentos, en el equipo se logró obtener monocristales de alfa cuarzo con alta calidad cristalina, lo cual posteriormente será reportado.

CONCLUSIONES

Se logró la construcción satisfactoria de una autoclave investigativa de laboratorio con diseño propio que ha demostrado su aptitud para realizar crecimientos hidrotermales de cuarzo y que satisface las condiciones de seguridad necesarias, a un costo aproximado de unos 500 pesos (sin incluir el sistema de control de temperatura, capaz de gobernar 4 autoclaves de este tipo simultáneamente). Por otra parte, la autoclave es susceptible de utilizar para otros crecimientos de cristales como por ejemplo de piedras preciosas, puesto que es capaz de soportar hasta las 6000 kgf/cm^2 de presión.

AGRADECIMIENTOS

Al concluir el objetivo de este trabajo, es decir el diseño y construcción de una autoclave para el crecimiento hidrotermal a escala de laboratorio, deseamos dejar patente en esta publicación nuestro profundo agradecimiento a los compañeros Ing. Alberto Victorero por su atención en cuanto al diseño y construcción de la autoclave y al C.Dr. Manuel Calviño por realizar el diseño y construcción de la interface y del programa de ejecución para el control automático de la temperatura.

BIBLIOGRAFÍA

- 1) Gilman, J.J. (1966). *The art and science on growing crystals*. Thid printing. New York. Editor. John Willey & Sons.
- 2) Laudise, R. A. (1959). *Chemical Eng. Progress*, Vol. 55, No. 5, p. 55 59.
- 3) Walker, A. C. (1950). *Ing. Eng. Chem.*, Vol. 42, No. 7, p 1369.
- 4) Lias, N. C. (1976). *J. Cryst. Growth*, Vol. 18, p 1-6.
- 5) Laudise, R. A. (1961). *J. Phys. Chem.*, Vol. 65, No. 8, p 1396.
- 6) Gasche, F. (1956). *Ing. Eng. Chem.*, Vol. 48, No. 5.
- 7) Freeman, J. W. (1956). *Ing. Chem.*, Vol. 48, No. 4.
- 8) Mickevics, E. J. (1956). *Ing. Eng. Chem.*, Vol. 48, No. 5.
- 9) Kennedy, G. C. (1950). *Am. J. Sci.*, Vol. 248, p 1540.
- 10) Borisov, M. (1981). *Bulgarian Journal of Physics*, Vol. 6, No. 6.
- 11) Autores Varios (1965). *Aceros Soviéticos*. Editorial: Instituto Cubano de Desarrollo de Maquinarias.
- 12) Bhattacharyya, R. K. (1974). *Computarized process control system for the growth of synthetic quartz crystals*. U. S. patent 3.805.044.

Recibido/14/2/1991