

УДК 532.516.5.013:536.25

© 2001 г. В.А. БРАЙЛОВСКАЯ, В.В. ЗИЛЬБЕРБЕРГ, Л.В. ФЕОКТИСТОВА

ТЕЧЕНИЕ И МАССОПЕРЕНОС ПРИ НЕСТАЦИОНАРНОМ ПИТАНИИ ПОВЕРХНОСТИ РАСТУЩЕГО КРИСТАЛЛА РАСТВОРОМ

Численно исследована смешанная конвекция в сильно пересыщенном изотермическом водном растворе дигидрофосфата калия над поверхностью растущего монокристалла. Нестационарный поток раствора на выходе из фидера моделируется заданием периодического по времени распределения скорости. Показано, что имеет место существенная гомогенизация концентрационного пограничного слоя по сравнению со случаем стационарного питания. Исследован характер течения в зависимости от расстояния фидер – поверхность кристалла.

Технология высокоскоростного профилированного выращивания водорастворимых кристаллов, разработанная в Институте прикладной физики РАН (см., например, [1, 2]), позволяет увеличить скорость выращивания кристаллов в 20 раз, минимизируя отходы, получаемые при изготовлении элементов нелинейной оптики. Это стало особенно актуальным в связи с возросшей потребностью в элементах большой апертуры, используемых в мощных лазерных системах. Существенным элементом этой технологии является создание интенсивного течения раствора над поверхностью растущего кристалла.

Вынужденная конвекция должна обеспечить: уменьшение толщины концентрационного пограничного слоя и, как следствие, увеличение скорости роста кристалла; гомогенизацию пограничного слоя для обеспечения послойного роста монокристалла и тем самым его необходимого оптического качества.

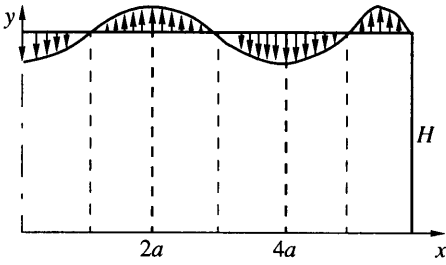
Моделирование течения раствора над поверхностью растущего кристалла, а также исследование массопереноса проводились как аналитически [3, 4], так и численно [5, 6].

Прежние численные расчеты проводились при достаточно низких (на два порядка меньших по сравнению с применяемыми в технологии интенсивного роста) скоростях раствора, что вызывало необходимость моделировать взаимодействие естественной и вынужденной конвекции при пониженной гравитации [5], и при стационарной подаче раствора в кристаллизационную камеру.

Стационарное течение раствора может приводить к образованию зон стагнации в пограничном слое, к существенной неоднородности распределения концентрации вблизи поверхности растущего кристалла и, как следствие, образованию ростовых дефектов. Поэтому в технологии высокоскоростного выращивания кристаллов используется нестационарная подача раствора в ростовую камеру.

В настоящей работе исследуется модель, позволяющая учесть нестационарный характер питания раствором поверхности кристалла. Кроме того, по сравнению с [5] скорости потока раствора приближены к реально используемым в эксперименте.

1. Постановка задачи. Нестационарное течение изотермического пересыщенного раствора над поверхностью растущего кристалла рассматривается в прямоугольной области (фиг. 1) между его поверхностью $y = 0$ и выходом трехсплового фидера $y = H$ в вертикальном направлении и границами кристаллизационной камеры ($|x| \leq ba$) – в



Фиг. 1. Схема расчета

горизонтальном. Вследствие симметрии задачи относительно оси y течение изучается в половине области ($x > 0$).

В начальный момент времени раствор втекает через сечения $0 < x < a$ и $3a < x < 5a$, $y = H$, а вытекает – через $a < x < 3a$ и $5a < x < 6a$, $y = H$, что обозначено направлением стрелок скорости на фиг. 1. В последние моменты времени втекание-вытекание через эти области меняется по гармоническому закону, что моделирует качание фидера в реальном эксперименте.

Поведение раствора описывается системой уравнений Навье – Стокса в приближении Буссинеска и массообмена в безразмерных переменных функции тока ψ , завихренности ω и концентрации c

$$\frac{\partial \omega}{\partial t} + U \frac{\partial \omega}{\partial x} + V \frac{\partial \omega}{\partial y} = \frac{\partial^2 \omega}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial y^2} - \frac{Gr_D}{Re^2} \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1.1)$$

$$\omega = \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} \quad (1.2)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + U \frac{\partial c}{\partial x} + V \frac{\partial c}{\partial y} = \frac{1}{Pr_D Re} \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) \quad (1.3)$$

$$U = \frac{\partial \psi}{\partial y}, \quad V = -\frac{\partial \psi}{\partial x}, \quad c = \frac{c_p - c^*(T_1)}{c^*(T_2) - c^*(T_1)}$$

$$Gr_D = \frac{g \beta_c [c^*(T_2) - c^*(T_1)] H^3}{\nu^2}, \quad Re = \frac{V_0 H}{\nu}, \quad Pr_D = \frac{\nu}{D}$$

В уравнениях (1.1)–(1.3) за характерный размер выбрана высота H ; c_p и $c^*(T_i)$ – концентрации раствора (1 кг соли на 1 кг раствора) и раствора, насыщенного при температуре T_i ; T_1 и T_2 – температуры раствора в кристаллизаторе и насыщения раствора, так что $(T_2 - T_1)$ – переохлаждение раствора, задающее его пересыщение; Pr_D и Gr_D – диффузионные числа Прандтля и Грасгофа; Re – число Рейнольдса; ν – кинематическая вязкость; D и β – коэффициенты диффузии и концентрационной плотности.

На всех твердых границах области задаются граничные условия непротекания и прилипания для гидродинамических переменных ψ и ω . На оси симметрии $U(0, y) = 0$, $V_x(0, y) = 0$. На верхней границе области ($y = H$) $U(x, H) = 0$, $V(x, H, t) = V_0 \cos(2\pi t/T)$

$$V(x, H) = \begin{cases} V_0(x^2 a^{-2} - 1), & 0 < x < a \\ V_0 \left\{ 1 - \left(\frac{x-2a}{a} \right)^2 \right\}, & a < x < 3a \\ V_0 \left\{ \left(\frac{x-4a}{a} \right)^2 - 1 \right\}, & 3a < x < 5a \\ V_0 \left\{ 1 - \left(\frac{2x-11a}{a} \right)^2 \right\}, & 5a < x < 6a \end{cases} \quad (1.4)$$

где T – период качания фидера, V_0 – амплитуда скорости.

Для концентрации $c(x, y)$ граничные условия имеют вид

$$\begin{aligned}c_x(0, y) = c_x(6a, y) = 0, \quad c(x, H) = 1 \\ c_y(x, 0) = \text{const} = \gamma\end{aligned}\tag{1.5}$$

Последнее граничное условие (на границе кристалл – раствор) хорошо выполняется для послойно растущих кристаллов типа дигидрофосфата калия вследствие отсутствия поверхностной диффузии адатомов. Значение γ в рассматриваемой модели выбирается не зависящим от других, кроме скорости потока V_0 , параметров задачи так, чтобы его величина давала хорошее совпадение значения скорости роста кристалла с экспериментом.

3. Метод решения. Система уравнений (1.1)–(1.3) решалась конечно-разностным методом по неявной схеме с использованием метода переменных направлений для уравнений завихренности и концентрации. Для конвективных членов применялись как монотонные аппроксимации, так и центральные разности. Использовались неравномерные сетки по обоим направлениям: по вертикали в пограничном слое у поверхности растущего кристалла сетки существенно сгущались для разрешения тонкого концентрационного пограничного слоя; по горизонтали – в областях $x = 2a, 4a$ и $6a$, т.е. в местах смены направлений входящего и выходящего потоков. Уравнение Пуассона решалось итерационным методом с набором оптимальных итерационных параметров. Тестовые расчеты на различных сетках ($101 \times 61, 201 \times 71, 285 \times 81$) позволили выявить оптимальные сеточные и временные параметры как для эволюционных уравнений, так и итерационные шаги для уравнения Пуассона.

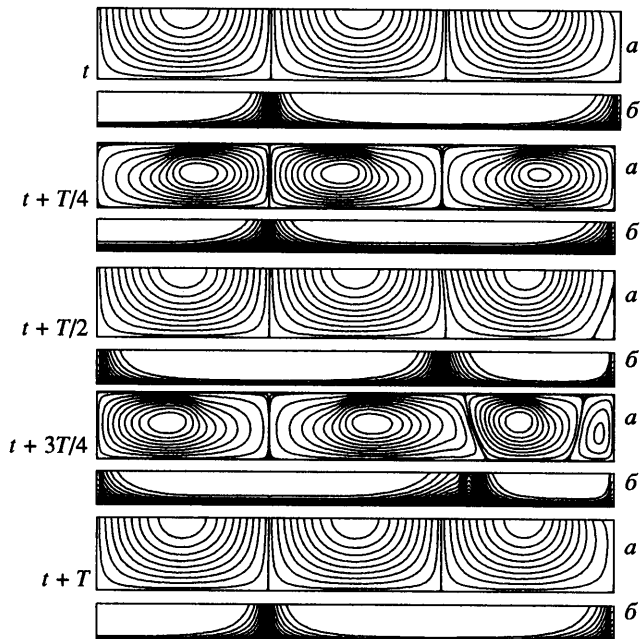
4. Результаты расчетов. Численное моделирование проводилось для параметров, характерных для раствора дигидрофосфата калия ($\nu = 10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}, D = 10^{-9} \text{ м}^2/\text{с}$). Другие параметры задачи были близки к их значениям в физических экспериментах: T_1 и T_2 равны 38 и 41°C (переохлаждение раствора 3°C), $a = 3,5 \text{ см}, V_0 = 10 \text{ см}/\text{с}, T = 10 \text{ с}$, что соответствует $\text{Pr}_D = 1000$. Числа Gr_D и Re для трех рассмотренных значений расстояний фидер – кристалл равны: $0,5 \cdot 10^6$ и 2000 для $H = 2 \text{ см}, 0,8 \cdot 10^7$ и 5000 для $5 \text{ см}, 6,4 \cdot 10^7$ и 10000 для 10 см . На фиг. 2–4 представлены результаты для $H = 2, 5$ и 10 см .

На фиг. 2–4 показаны: a – изолинии функций тока во всей области моделирования в моменты времени: $t, t + T/4, t + T/2, t + 3T/4, t + T$; b – изолинии концентрации в пограничном слое толщиной $\delta = 0,3 \text{ мм}$ в те же моменты времени; c – зависимости от времени полной кинетической энергии раствора E , где $E = \sum_{i,j} (U_{i,j}^2 + V_{i,j}^2)$ и сумма вычисляется по всем ячейкам расчетной сетки.

На фиг. 2–4 результаты представлены для квазистационарного периодического течения раствора. Для сравнения на фиг. 5 приведены полученные ранее [6] результаты моделирования установившегося течения раствора для случая стационарного питания.

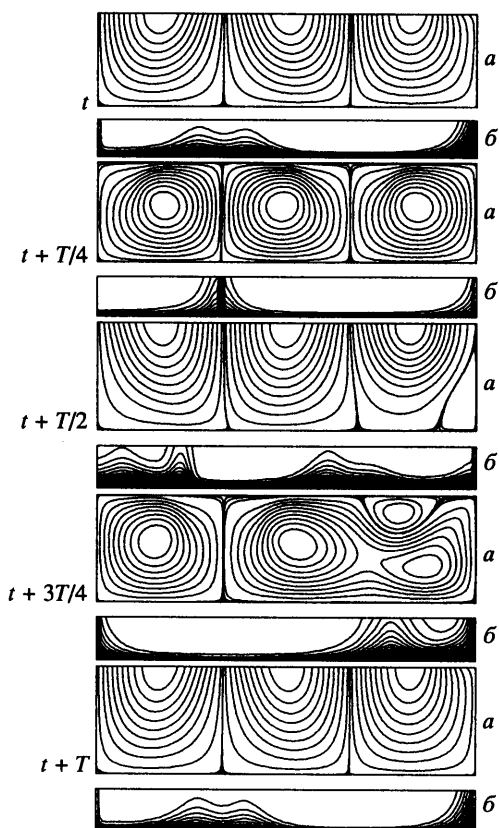
Для подробного анализа структуры течения в полостях разной высоты и ее влияния на поле концентрации в пограничном слое у поверхности кристалла во всех вариантах фиг. 2, b , 3, b и 4, b выбрана одна и та же толщина этого слоя $0,3 \text{ мм}$, что составляет $0,015, 0,006$ и $0,003$ высоты области для $H = 2, 5$ и 10 см .

Для оценки влияния нестационарности подачи раствора в камеру рассматриваются сначала картины изолиний ψ, c и $E(t)$ (фиг. 5, a – c) для стационарного случая в полости $H = 5 \text{ см}$ в момент времени $t = 5 \text{ с}$. Из графика $E(t)$ видно, что к этому времени конвективное течение устанавливается и принимает вид трех ячеек (фиг. 2, a), внутри каждой из которых часть раствора поступает в камеру, а часть вытекает. В соответствии с характером гидродинамической структуры в области $x = 2a$, где суммарное из двух ячеек течение направлено вверх, наблюдается вынос вещества от поверхности растущего кристалла, что проявляется в виде пика обедненной концентрации (фиг. 5, b). Подобно этому массоперенос у стенки $x = 6a$ приводит также к обеднению питания



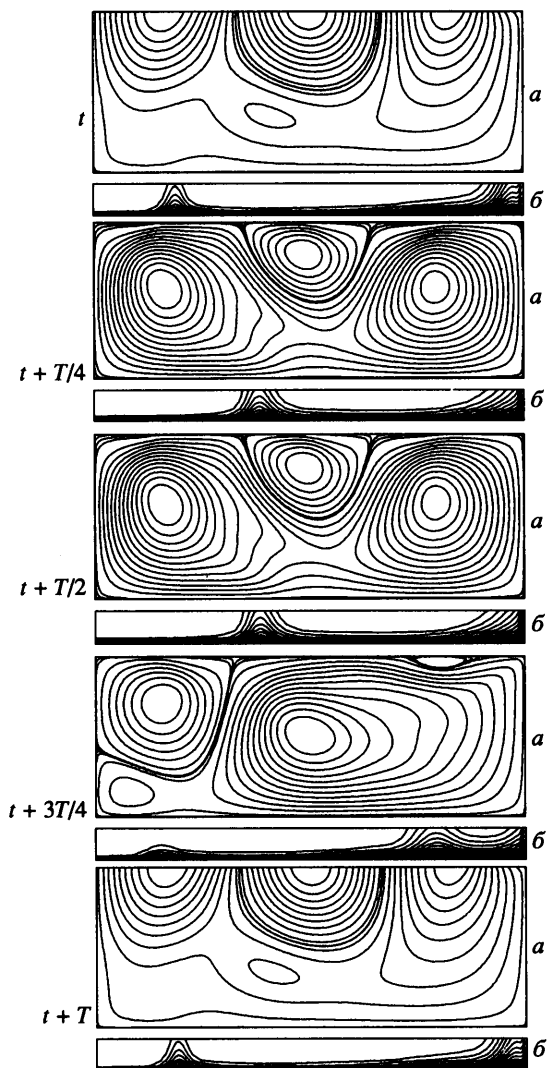
Фиг. 2

Фиг. 2. Изолинии функций тока $\psi(a)$ в области моделирования в моменты времени: $t, t + T/4, t + T/2, t + 3T/4, t + T$ для $H = 2$ см, концентрации c (б) в пограничном слое в те же моменты времени



Фиг. 3

Фиг. 3. Изолинии функций тока $\psi(a)$ в области моделирования в те же моменты времени, как на фиг. 2, для $H = 5$ см, концентрации c (б) в пограничном слое

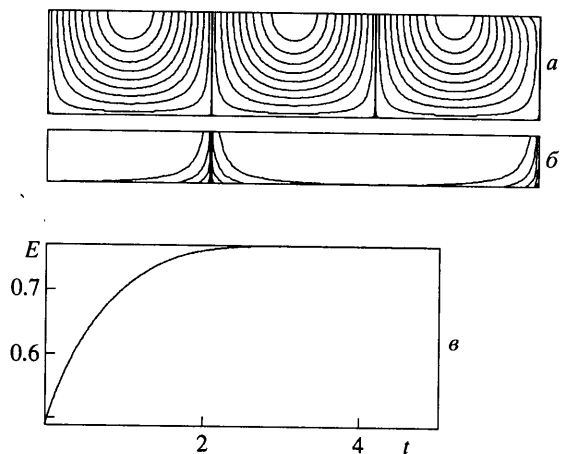


Фиг. 4. Изолинии функций тока $\psi(a)$ в области моделирования в те же моменты времени, как на фиг. 2, для $H = 10$ см, концентрации c (б) в пограничном слое

поверхности кристалла в углу, но меньшего, чем при $x = 2a$, из-за трения у стенки, замедляющего скорость подъемного течения.

Таким образом, для гомогенизации раствора у поверхности целесообразно организовать нестационарное питание, обеспечивающее периодическую смену режима втекания и вытекания раствора над поверхностью растущего кристалла.

Результаты моделирования этого процесса в области с $H = 2$ см показаны на фиг. 2, а и б в последовательные моменты времени через $1/4$ периода (2,5 с). Из картин течения видно, что через $1/2$ периода происходит инверсия втекающих и вытекающих потоков, а при $t = T/4$ и $3T/4$ прекращается обмен с окружающей средой; течение при этом продолжается по инерции и за счет естественной концентрационной конвекции по замкнутым траекториям в виде трех подобных вихрей. Небольшой вторичный вихрь, образовавшийся в нижнем углу у стенки за счет трения при смене направления

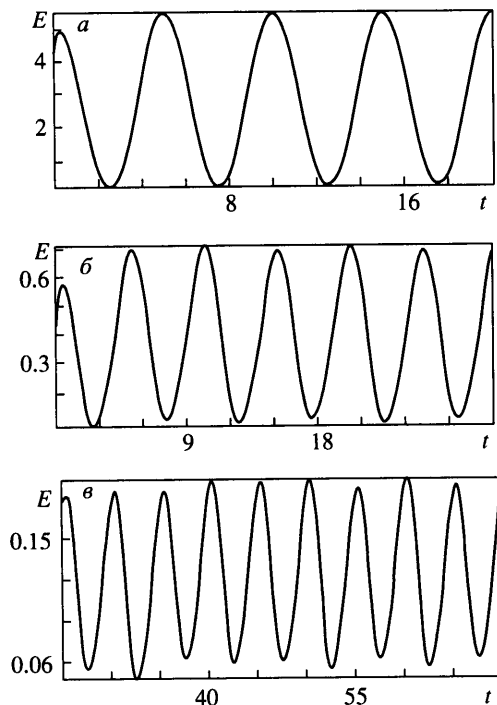


Фиг. 5. Изолинии функций тока $\psi(a)$ в области моделирования с $H = 5$ см и концентрации c (б) в пограничном слое, установившие стационарного состояния кинетической энергии E (в) при стационарной подаче раствора

основного течения на противоположное в момент $t = T/2$, оттесняет первичный вихрь от стенки и к моменту $t = 3T/4$ приводит к образованию четырехвихревой структуры. Пик обедненной концентрации на фиг. 2, б, локализованный в начале периодического процесса, как и в стационарном случае, в области $x = 2a$, смещается при $T/2$ и $2T/4$ в область $x = 4a$, а затем при $t = T$ опять возвращается в исходное положение. Между тем меньший, чем в $x = 2a$, вынос вещества наблюдается при $t = T/2$ и $3T/4$ в $x = 0$ (ось симметрии) в полном соответствии с картиной течения. В то же время пики обедненной концентрации не пропадают и вблизи стенки вследствие возникновения вторичных вихрей, которые создают подъемное течение у стенки с сопутствующим ему выносом вещества от поверхности растущего кристалла, хотя и менее сильному из-за малой интенсивности вторичных вихрей.

Подобно этому сценарию развивается эволюционный процесс и в области с $H = 5$ см (фиг. 3, а). Заметное различие в структуре течения наблюдается при $t = 3T/4$, когда возникший у стенки при $t = T/2$ вторичный вихрь поднимается вверх и вытесняется к поверхности слившимися в один двумя основными вихрями. Поэтому подъемное течение с выносом концентрации вблизи стенки имеет место во время всего периода движения (см. изолинии c в пограничном слое на фиг. 3, б). Максимальное обеднение раствора у поверхности, как в случае с $H = 2$ см (фиг. 2, б), наблюдается в районе $x = 2a$ при $t = T/4$, но в целом концентрационный пограничный слой в среднем за период получается более однородным, чем при меньшем расстоянии фидера до поверхности кристалла.

В еще более глубокой области ($H = 10$ см) течение не имеет выраженного трехвихревого характера (фиг. 4, а), как это было в случаях $H = 2$ и 5 см, а максимум обедненной концентрации (фиг. 4, б) перемещается монотонно от $x = 2a$ (в начале периода) в сторону стенки вплоть до $t = 3T/4$, а затем картина повторяется в момент $t = T$. Надо отметить также, что в этом случае нет таких резких пиков недонасыщения раствора, как на фиг. 2, б и 3, б. В этом случае пограничный слой даже не успевает реагировать на перемещения фидера. Таким образом обеспечивается относительно большая однородность поля концентрации в пограничном слое, чем в менее глубоких областях.



Фиг. 6. Зависимости от времени кинетической энергии раствора E для $H = 2$ (а), 5 (б), и 10 см (в)

На фиг. 6, а–в представлены графики эволюции энергии во времени для трех рассмотренных вариантов высоты полости. Квазистационарный периодический процесс устанавливается скорее всего при $H = 2$ см, максимальное значение кинетической энергии E в области, отнесенное к ячейке сетки, обратно пропорционально квадрату расстояния H до поверхности растущего кристалла при одинаковом распределении скорости $V(x)$ на входе.

Заключение. Результаты моделирования позволяют сделать ряд выводов. Имеет место существенное сглаживание неоднородностей концентрационного пограничного слоя по сравнению со случаем стационарного течения. Миграция пиков обедненной концентрации раствора по поверхности кристалла в течение периода способствует гомогенизации среднего по времени потока вещества на разные участки поверхности растущего кристалла. С уменьшением расстояния фидер – кристалл концентрационный пограничный слой становится более тонким и, как следствие, увеличивается скорость роста кристалла. С увеличением этого расстояния улучшается однородность концентрационного пограничного слоя.

Проведенное моделирование позволяет выбрать в реальном эксперименте порядок выходной (из фидера) скорости раствора в зависимости от расстояния фидер – кристалл и периода колебаний фидера для достижения оптимального соотношения между скоростью роста кристалла и его качеством, определяемым однородностью концентрационного пограничного слоя.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 99-01-01116).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bespalov V.I., Bredikhin V.I., Ershov V.P., Zilberberg V.V.* Perspectives for creation of highly effective technology for fabricating KDP и KD*P crystals for ICF // Proc. SPIE. 1997. V. 3047. P. 899–902.
2. *Bespalov V.I.* Large-size monosectorial crystal elements for powerful laser systems // J. Nonlinear Opt. Phys. and Materials. 1997. V. 6. № 4. P. 467–472.
3. *Potapenko S.Yu.* Two-dimensional mass transfer models for high-rate crystal growth from solution // J. Crys. Growth. 1993. V. 133. № 1–2. P. 132–140.
4. *Potapenko S.Yu.* Formation of solution inclusions in crystal under effect of solution flow // J. Crys. Growth. 1998. V. 186. № 3. P. 446–455.
5. *Брайловская В.А., Зильберберг В.В., Феоктистова Л.В.* Исследование влияния невесомости на конвекцию и массообмен при росте кристаллов из водных растворов // Изв. АН СССР. МЖГ. 1994. № 5. С. 62–66.
6. *Brailovskaya V.A., Zilberberg V.V., Feoktistova L.V.* Numerical investigation of natural and forced solutal convection above the surface of a growing crystal // J. Crys. Growth. 2000. V. 210/4. P/767–771.

Нижний Новгород

Поступила в редакцию
24.1.2000