

УДК 532.5, 548.52, 534.2

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕЧЕНИЙ В ЖИДКОСТИ, ИНДУЦИРОВАННЫХ СФОКУСИРОВАННЫМ УЛЬТРАЗВУКОВЫМ ПОЛЕМ, И ИХ ПРИМЕНЕНИЕ ДЛЯ ВОЗДЕЙСТВИЯ НА РОСТ МОНОКРИСТАЛЛОВ

В. И. Родченков, Д. А. Сергеев

Институт прикладной физики РАН, 603950 Нижний Новгород
E-mail: daniil@hydro.appl.sci-nnov.ru

С использованием PIV-метода исследована структура стационарных акустических течений на твердой поверхности, подвергнутой воздействию акустического излучения по нормали к предфокальной и послефокальной плоскостям сферического концентратора. Результаты модельных экспериментов использованы для скоростного выращивания водорастворимых монокристаллов.

Ключевые слова: акустические течения, ультразвук, PIV-метод.

Введение. Исследованию течений в неоднородных акустических полях посвящено большое количество теоретических и экспериментальных работ, в которых изучаются вихревые потоки, возникающие как в свободных неоднородных полях, так и вблизи различных препятствий, помещенных в звуковое поле. Наибольший практический интерес представляет изучение пограничных акустических течений. Достаточно полно результаты проведенных исследований обобщены в монографиях [1, 2]. В работах [3, 4] показано, что при воздействии ультразвука на диффузионно лимитируемые гетерогенные процессы, такие как химическое или электрохимическое осаждение, растворение, экстракция, проявление экспонированного фотослоя, важным интенсифицирующим фактором являются пограничные течения на твердой поверхности. Масштаб пограничных микропотоков на поверхности воздействия определяется пространственной неоднородностью действующего поля, при этом интенсифицирующее влияние ультразвука является наиболее значительным при падении акустической волны по нормали (см. [3. Ч. 8, гл. 1, § 4; гл. 3, § 7]).

Имеющиеся немногочисленные и противоречивые сведения о влиянии упругих полей на рост монокристаллов обобщены в монографии [5], в которой отмечается, что в экспериментах наблюдается как ускорение, так и замедление роста монокристаллов при воздействии на них акустического излучения. В работах, посвященных исследованию воздействия ультразвука на рост и растворение монокристаллов, не установлена зависимость наблюдаемых эффектов от параметров поля, не рассмотрены механизмы ускорения массообмена на границе раздела фаз.

В практике получения водорастворимых монокристаллов процесс роста кристалла (в естественной огранке или по выделенному кристаллографическому направлению) со скоростью более 10 мм/сут называется скоростным. Такие скорости достигаются при большом пересыщении раствора и кинетическом режиме роста, реализация которого возможна

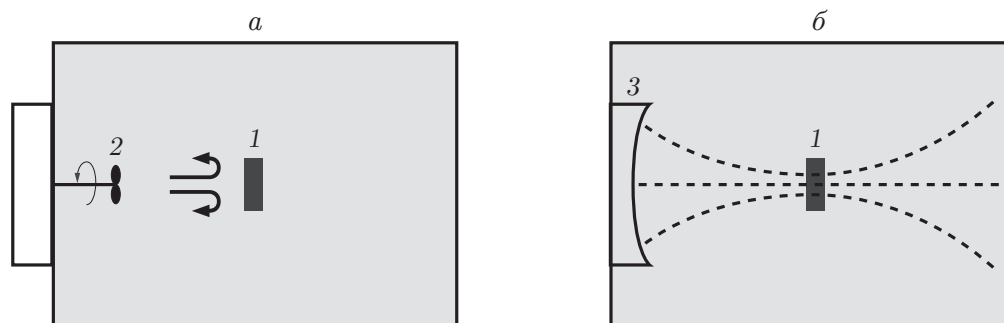


Рис. 1. Схемы гидромеханического (а) и ультразвукового (б) воздействия на рост монокристалла:

1 — затравка кристалла, 2 — пропеллерная мешалка, 3 — источник сфокусированного ультразвукового излучения

только в условиях интенсивного внешнего гидромеханического воздействия. На рис. 1,а показана схема одного из вариантов скоростного метода, при котором растущая грань кристалла подвергается струйному воздействию с помощью пропеллерной мешалки.

В настоящей работе изучается возможность совершенствования технологии процесса скоростного выращивания солевых монокристаллов путем использования ультразвука. Основная идея такой модификации состоит в том, чтобы изолировать кристалл стенками из химически стерильного звукопроницаемого материала, а необходимую гидродинамическую ситуацию на растущей поверхности создать бесконтактно, акустическими средствами. Это позволит сохранить чистоту ростовой среды, имеющую большое значение для получения качественных кристаллов.

Применение фокусировки при акустическом воздействии на рост монокристаллов обусловлено следующими причинами. При падении на твердую поверхность по нормали сфокусированная волна создает тангенциальную неоднородность поля. Поскольку в фокальной области интенсивность звука максимальна, можно допустить, что влияние волн, отраженных от стенок аппаратуры, на возникающие в этой области течения незначительно. Упрощенная схема акустического воздействия показана на рис. 1,б. Серия неудачных экспериментов по выращиванию монокристаллов дигидрофосфата калия (KDP) с использованием течений, индуцированных сфокусированным ультразвуком [6–9], показала, что для прогнозирования массообменных характеристик таких течений необходимо точно определить их масштаб и амплитуды скорости. Априорная оценка затруднительна, так как точное распределение поля в исследуемой области неизвестно. Измерения с помощью гидрофонов не позволяют получить требуемое пространственное разрешение. Для решения данной проблемы проведено непосредственное измерение поля скоростей течений с применением PIV-методов (particle image velocimetry).

1. Схема и методика эксперимента. На рис. 2 представлена схема экспериментальной установки для изучения акустических течений PIV-методом. В качестве источника сфокусированного ультразвука использовался сферический концентратор ($f = 1,4$ МГц) с фокусным расстоянием 50 мм и углом раскрытия 85° . Максимальная амплитуда звукового давления в фокусе излучателя составляла приблизительно $5 \cdot 10^5$ Па. С целью исследования гидродинамической ситуации на твердой поверхности при воздействии акустического излучения в фокальной зоне концентратора проведено две серии измерений. Пластина, волновое сопротивление которой близко к сопротивлению солевого кристалла, подвергалась воздействию акустического излучения по нормали в предфокальной и послефокальной плоскостях излучателя. Для визуализации течений в экспериментах в ка-

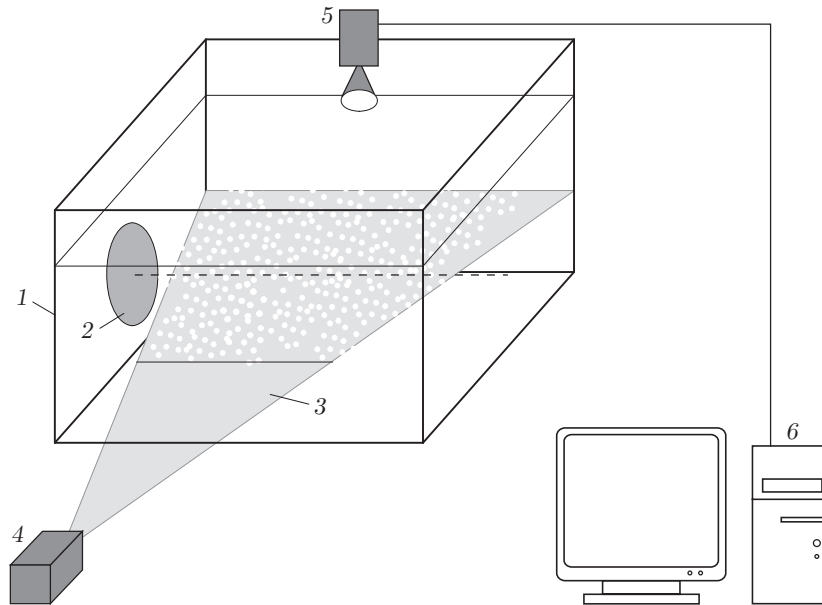


Рис. 2. Схема экспериментальной установки для исследования акустических течений PIV-методом:

1 — акустическая ванна, 2 — сферический концентратор, 3 — лазерный нож, 4 — источник лазерного излучения, 5 — цифровая видеокамера, 6 — компьютер; штриховая линия — акустическая ось

честве маркеров использовались субмикронные (размером порядка 0,1 мкм) кинетически и агрегативно-стабильные частицы, приготовленные на основе поливинилацетатного латекса, которые вводились в жидкость, заполнявшую акустическую ванну из прозрачного пластика ($20 \times 15 \times 10$ см) (см. рис. 2). Фокальная область сферического концентратора просвечивалась по акустической оси горизонтальным лазерным ножом, сформированным цилиндрической линзой из луча лазера NdYag (мощность 200 мВт, длина волны 532 нм). Течение, визуализированное рассеиваемым на микрочастицах лазерным излучением, фиксировалось сверху на цифровую видеокамеру. Размер области съемки составляет 40×20 мм. Полученное цифровое изображение обрабатывалось на компьютере с использованием стандартных алгоритмов PIV-метода. В результате обработки изображений получено двумерное поле скорости, задаваемое в узлах координатной сетки. Относительная погрешность измерения скорости в фиксированной точке составляет 5 %, пространственное разрешение (шаг сетки) приблизительно равно 1 мм.

2. Результаты измерений. С использованием PIV-метода получена полная картина акустических течений, возникающих в рассматриваемой области при действии ультразвука. На рис. 3 показано стационарное поле скоростей течений, зарегистрированное при воздействии акустического излучения на твердую поверхность за волновым фокусом. Данная картина характерна для потоков, возникающих под действием затопленной струи, падающей на плоскость по нормали и представляющей собой интенсивное течение Эккарта из фокальной перетяжки.

В случае если твердая граница расположена в предфокальной зоне, в установившемся режиме наблюдается конкуренция потоков Рэля и Эккарта (рис. 4). Анализ полученного поля скоростей акустических течений показывает, что в предфокальной зоне одновременно существуют течения трех типов: пограничные потоки, вызывающие спутное среднемасштабное течение, направленное к излучателю, и конкурирующее с ним слабое течение

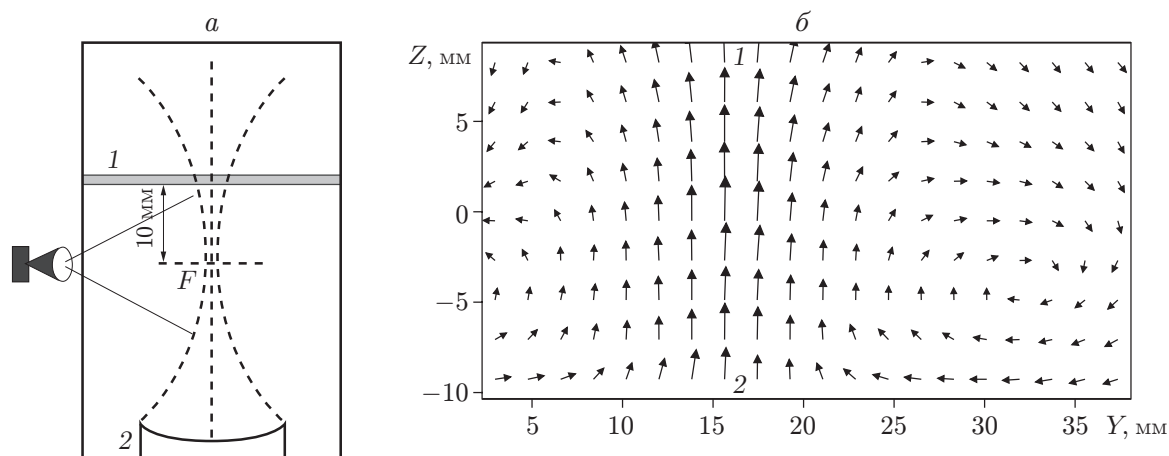


Рис. 3. Картина течений в послефокальной области:

a — схема эксперимента (вид сбоку), *б* — поле скоростей; 1 — твердая граница, 2 — источник ультразвукового излучения; максимальная длина стрелки соответствует скорости $v = 16,163$ мм/с, минимальная — $v = 0,017$ мм/с

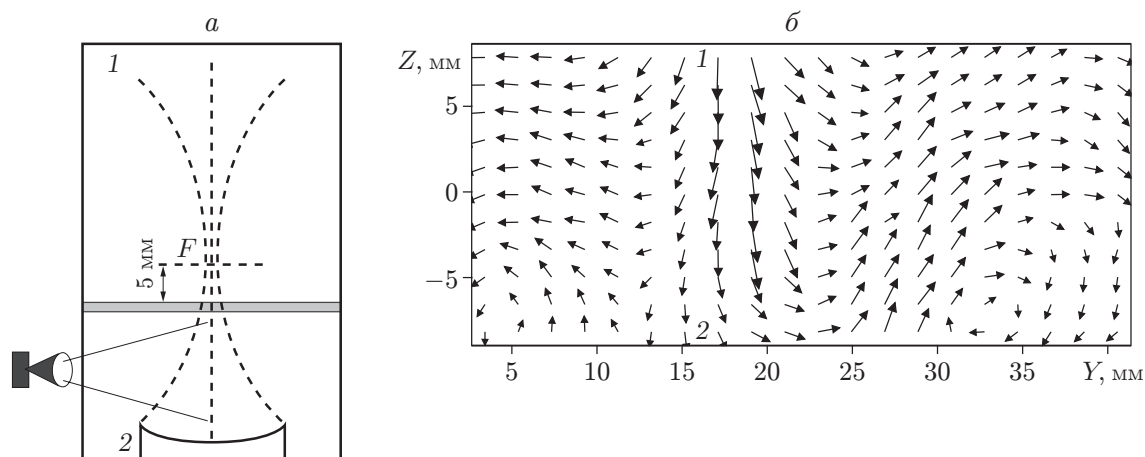


Рис. 4. Картина течений в предфокальной области:

a — схема эксперимента (вид сбоку), *б* — поле скоростей; 1 — твердая граница, 2 — источник ультразвукового излучения; максимальная длина стрелки соответствует скорости $v = 3,87$ мм/с, минимальная — $v = 0,017$ мм/с

Эккарта, возникающее в свободном поле до твердой границы. Такая картина течений ранее в экспериментах по изучению акустических течений не наблюдалась. Скорость пограничного течения Шлихтинга, оцененная по полученной непосредственным измерением максимальной скорости спутного потока Рэлея, составляет не менее 4 мм/с, что на порядок превышает известные оценки [3. Ч. 8, гл. 3, § 7].

3. Влияние сфокусированного ультразвука на рост солевых монокристаллов. Как показывают непосредственные измерения PIV-методом, характерная величина изменения скорости интенсивных течений Эккарта (см. рис. 3) и Шлихтинга (см. рис. 4) вблизи твердой границы составляет 2 мм, что существенно меньше размеров исследуемой грани (10×10 и 15×15 мм), ранее использовавшихся в экспериментах со сфокусированным ультразвуком [6–9]. (Данное несоответствие возникло вследствие некорректного определения масштаба течений с применением простейших средств визуализации — кон-

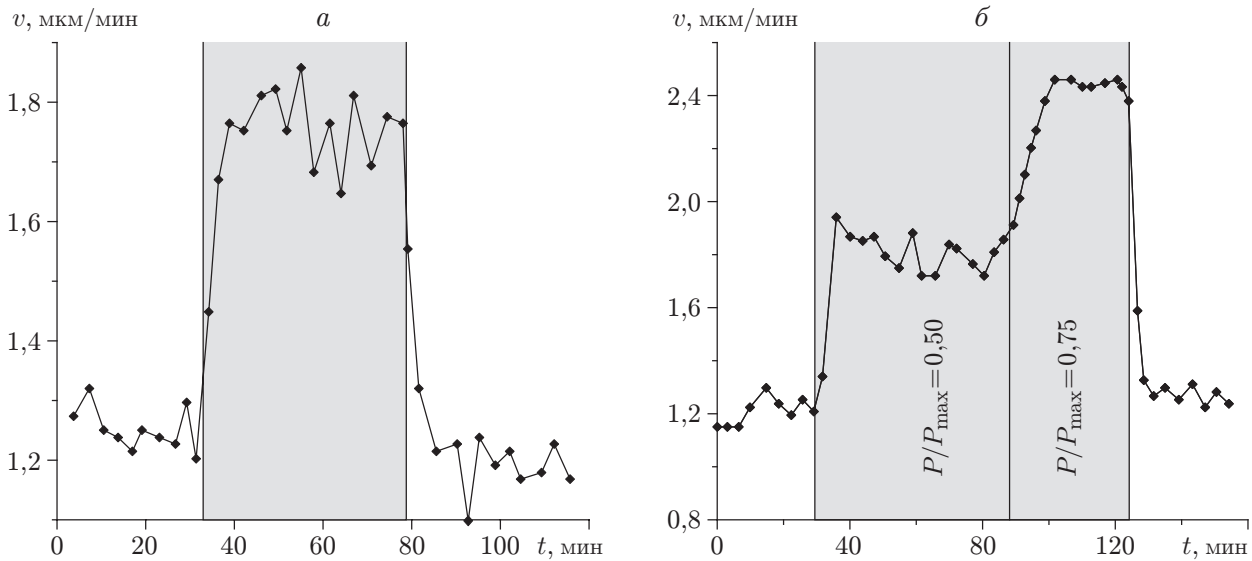


Рис. 5. Зависимость скорости роста сингулярной грани (100) кристалла KDP от времени:

a — послефокальная плоскость ($F + 10$ мм), b — предфокальная плоскость ($F - 5$ мм); заштрихованная область — зона воздействия ультразвукового излучения

трастного красителя и фигур травления солевых пластинок [7, 8].) В этом случае в силу особенностей механизма роста, характерного для кристаллов класса KDP, локальная гидродинамическая неравномерность на поверхности растущей грани не позволяет ускорить рост грани [10].

В работе [10] проводились эксперименты по выращиванию монокристаллов, в которых размер кристаллической затравки приведен в соответствие с масштабом течения. Подвергаемая ультразвуковому излучению грань (100) кристалла KDP с начальными размерами не более $1,5 \times 1,5$ мм регенерировалась в растворе, имеющем температуру насыщения, приблизительно равную 45°C , и подрачивалась при температуре переохлаждения порядка 5°C , до тех пор пока ее размеры не достигали 2×2 мм. Затем образцы по нормали подвергались воздействию акустического излучения в послефокальной и предфокальной плоскостях сферического концентратора. Результат акустического воздействия контролировался путем измерения скорости роста исследуемой грани кристалла с использованием нелинейно-оптических средств [11]. В опытах в реальном времени проводилась компьютерная обработка оцифрованного сигнала оптической системы, позволяющая получить временную и температурную зависимости скорости роста кристалла и фиксировать влияние на нее гидродинамического и акустического воздействий.

На рис. 5, a представлена зависимость скорости роста кристалла в послефокальной плоскости (на расстоянии 10 мм за волновым фокусом) от времени. Показана временная область акустического (ультразвукового) воздействия на кристалл, растущий в условиях свободной концентрационной конвекции. При включении звука предельной интенсивности скорость роста в 1,5 раза превышает скорость, характерную для условий свободной конвекции. После выключения звука скорость роста уменьшается, принимая начальное значение. Поле скоростей течений, возникающих в данной акустической ситуации, показано на рис. 3. Видно, что в рассматриваемом случае акустическое воздействие аналогично гидромеханическому. Эффективность его сравнительно мала, так как скорость течения Эккарта составляет 16 мм/с. При внешнем струйном воздействии на растущую грань

кристалла для обеспечения кинетического режима, в котором скорость роста максимальна, скорости течений должны быть на порядок больше [12]. При переходе к кинетическому режиму для кристаллов таких размеров характерно увеличение скорости роста в 2–2,5 раза по сравнению с ее значением в условиях свободной конвекции [13].

На рис. 5,б представлена зависимость скорости роста кристалла в предфокальной плоскости от времени, полученная в результате воздействия на него акустического поля. Показаны временные интервалы и относительная амплитуда воздействия акустического поля. Соответствующее данной акустогидродинамической ситуации поле скоростей течений показано на рис. 4. Из рис. 3 следует, что при амплитуде звукового давления $P \approx 0,35P_{\max}$ начинается ускорение роста рассматриваемой грани, а при $P \approx 0,75P_{\max}$ скорость роста примерно в два раза превышает скорость, характерную для условий свободной конвекции. Скорость роста при максимальной амплитуде воздействия измерить не удалось, так как интенсивный ультразвук нарушает работу оптической измерительной системы.

Анализ результатов проведенных экспериментов показывает, что интенсифицирующее действие пограничных микропотоков Шлихтинга существенно сильнее воздействия импактной струи Экарта, в том числе при меньшей амплитуде поля. Следует отметить, что эффект, иллюстрируемый рис. 5, несмотря на внешнее сходство, обусловлен совершенно разными акустогидродинамическими механизмами. Установление данного факта является одним из основных результатов настоящей работы.

В обоих экспериментах ускорение роста оставалось устойчивым до тех пор, пока наблюдаемая грань не вырастала до размеров более 3×3 мм. Дальнейшая нестабильность процесса, очевидно, обусловлена нарушением равномерности распределения акустогидродинамических параметров течения на исследуемой поверхности (вследствие вновь возникшего различия масштабов пограничного течения и затравки) и соответствующей морфологической реакции.

Заключение. С использованием PIV-метода определены поля акустических течений, возникающих вблизи твердой поверхности, подвергнутой воздействию акустического излучения по нормали в пред- и послефокальных плоскостях сферического концентратора ($f = 1,4$ МГц). Результаты проведенных измерений позволили оптимизировать условия воздействия сфокусированного ультразвука на рост монокристаллов KDP. Показана принципиальная возможность управляемого ультразвукового воздействия на процесс роста монокристаллов.

Авторы выражают благодарность Д. А. Касьянову и В. П. Ершову за помощь в работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. **Ниборг В.** Акустические течения // Физическая акустика / Под ред. У. Мэзона. М.: Мир, 1969. Т. 2, ч. Б. С. 302–377.
2. **Зарембо Л. К.** Введение в нелинейную акустику / Л. К. Зарембо, В. А. Красильников. М.: Наука, 1966.
3. **Физика** и техника мощного ультразвука. Т. 3. Физические основы ультразвуковой технологии / Под ред. Л. Д. Розенберга. М.: Наука, 1970.
4. **Агранат Б. А.** Ультразвуковая технология / Б. А. Агранат, В. И. Башкиров, Ю. И. Китайгородский, И. Н. Хавский. М.: Металлургия, 1974.
5. **Капустин А. П.** Влияние ультразвука на кинетику кристаллизации. М.: Изд-во АН СССР, 1962.

6. **Ершов В. П., Касьянов Д. А., Родченков В. И., Хлюнев Н. В.** О росте и растворении солевых монокристаллов в неоднородном акустическом поле // Тр. 7-й Науч. конф. по радиофизике, Нижний Новгород, 7 мая 2003 г. Н. Новгород: ТАЛАМ, 2003. С. 249–250.
7. **Ершов В. П., Касьянов Д. А., Родченков В. И.** Акустогидродинамические эффекты при росте и растворении кристаллов в поле упругих колебаний // Тр. 8-й Науч. конф. по радиофизике, Нижний Новгород, 7 мая 2004 г. Н. Новгород: ТАЛАМ, 2004. С. 198–199.
8. **Ершов В. П., Касьянов Д. А., Родченков В. И.** О точном измерении температуры поверхности раздела фаз при озвучивании // Сб. тр. 15-й сессии Рос. акуст. о-ва. М.: ГЕОС, 2004. Т. 2. С. 59–63.
9. **Ершов В. П., Касьянов Д. А., Родченков В. И., Сергеев Д. А.** О количественных соотношениях в процессах массообмена при росте и растворении солевых кристаллов в акустическом поле // Сб. тр. 16-й сессии Рос. акуст. о-ва. М.: ГЕОС, 2005. Т. 2. С. 73–77.
10. **Ершов В. П., Касьянов Д. А., Родченков В. И., Сергеев Д. А.** Влияние акустических течений на рост и растворение солевых кристаллов // Сб. тр. 18-й сессии Рос. акуст. о-ва. М.: ГЕОС, 2006. Т. 2. С. 95–98.
11. **Bredikhin V. I., Ershov V. P., Korolikhin V. V., et al.** Mass transfer processes in KDP crystal growth from solutions // J. Crystal Growth. 1987. V. 84. P. 509–514.
12. **Брайловская В. А., Зильберберг В. В., Феоктистова Л. В.** Течение и массоперенос при нестационарном питании поверхности растущего кристалла раствором // Изв. РАН. Механика жидкости и газа. 2001. № 3. С. 71–78.
13. **Ершов В. П.** Скоростной рост моносекториальных профилированных кристаллов группы KDP: Дис. ... канд. физ.-мат. наук. Н. Новгород, 2007.

*Поступила в редакцию 22/X 2007 г.,
в окончательном варианте — 22/V 2008 г.*
