

УДК 51.73:532.54:536.24

## МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ГАЗОДИНАМИЧЕСКИХ И ТЕПЛОВЫХ ЯВЛЕНИЙ В ПРОЦЕССЕ ПЛАЗМОХИМИЧЕСКОЙ КОНВЕРСИИ $\text{SiCl}_4$ В СВЧ-РАЗРЯДЕ

© 2013 г. *В.А. Шапошников*<sup>1</sup>, *А.В. Гусев*<sup>2</sup>, *А.Ю. Суханов*<sup>2</sup>, *Р.А. Корнев*<sup>2</sup>, *Л.В. Шабарова*<sup>1</sup><sup>1</sup>Нижегородский госуниверситет им. Н.И. Лобачевского<sup>2</sup>Институт химии высококачественных веществ им. Г.Г. Девярых РАН, Н. Новгород

shaposhnikovva@mail.ru

Поступила в редакцию 04.07.2012

Реализована методика моделирования СВЧ плазмохимического реактора с применением программного комплекса Ansys CFX, позволяющая проводить параметрические исследования и повысить информативность исследуемых процессов. Приведены результаты исследования гидродинамических и теплообменных процессов в задаче плазмохимической конверсии тетраоксида кремния. Исследования проводились с использованием современных вычислительных технологий гидрогазодинамики, что дало возможность детализировать поля скоростей и температур, а также расходы газа в области плазмы и определить мощность, затрачиваемую на нагрев газа, температуру газа и время пребывания в реакционной зоне.

*Ключевые слова:* реактор, численный эксперимент, конверсия газов, плазма, турбулентность, тетраоксид кремния.

### Введение

Важной задачей при исследовании процессов конверсии тетраоксида кремния в плазме и разработке технологического процесса является получение данных о газодинамических и тепловых характеристиках, поскольку они позволяют выявить конструктивные особенности плазмотрона, оптимизировать его работу и провести масштабирование процесса.

В [1, 2, 3] проводились исследования процесса конверсии  $\text{SiCl}_4$  в водородной плазме СВЧ-разряда. Исследования проводились при давлении 667 Па, мощности 900 Вт и в объемном соотношении  $\text{H}_2/\text{SiCl}_4 = 5.5$ . Было показано, что основными продуктами реакции являются кремний, полисиланхлориды и гексахлордисилан.

Цель данной работы заключается в моделировании газодинамических и тепловых процессов, происходящих в процессе плазмохимической конверсии тетраоксида кремния, – определении температурных полей, распределения скоростей и характера течения газа, что позволяет провести оценку наиболее важных параметров технологического процесса: температуры газа в области плазмы и времени пребывания реагентов в реакционной зоне.

### Постановка задачи

Реактор (рис. 1) представляет собой кварцевую трубу длиной  $L = 0.5$  м и диаметром  $D = 0.024$  м.

Для подачи газа непосредственно в зону плазмы в реактор заведено центральное сопло диаметром  $d_0 = 0.01$  м и длиной  $l = 0.02$  м. В верхней части реактора предусмотрен ввод для боковой подачи водорода, что обеспечивает предохранение стенок реактора от перегрева ( $l_0 = 0.02$  м). В проводимых физических экспериментах видимая область плазмы представляла собой эллипсоид, центральное сечение которого есть эллипс с большой осью  $m = 0.036$  м и малой  $n = 0.022$  м. Температура стенок реактора не превышала 2000 К, а вблизи выхода  $e-f$  не превышала 300 К. Расход газов через центральное сопло и боковой ввод составлял  $3.5 \cdot 10^{-6}$  м<sup>3</sup>/с и  $3.3 \cdot 10^{-7}$  м<sup>3</sup>/с соответственно.

В математической постановке рассматривается задача теплообмена в гидродинамическом потоке смеси идеальных газов. Концентрация таких продуктов реакции, как полисиланхлориды и гексахлордисилан, в смеси  $\text{H}_2 + \text{SiCl}_4$  составляет менее 1%, следовательно в математической модели не учитывается. Режим движения газов – турбулентный. Взаимодействующая в потоке смесь рассматривается с учетом теплопередачи посредством конвекции и теплопроводности и описывается следующей системой дифференциальных уравнений в частных производных:

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_i \vec{V}_i) = 0, \quad (1)$$

$$\frac{\partial (\rho_i \cdot \vec{V}_i)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_i \vec{V}_i \otimes \vec{V}_i) = -\nabla p + \nabla \cdot \tau_i, \quad (2)$$

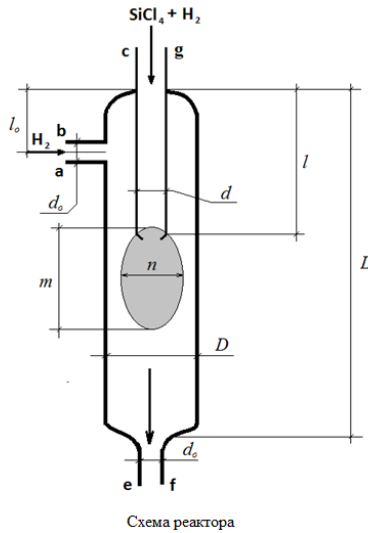


Рис. 1

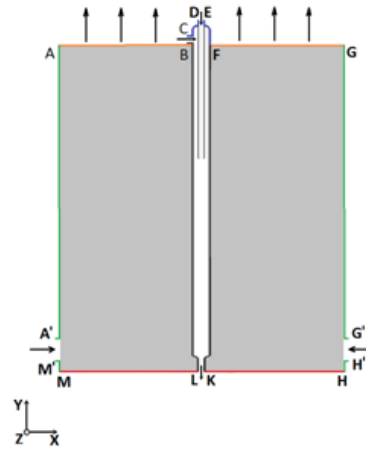


Рис. 2

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho_i c_{pi} T)}{\partial t} + \nabla(\rho_i c_{pi} T \vec{V}_i) = \\ = \nabla(\lambda_{ie} \nabla T) + \nabla(\vec{V}_i \tau_i) + \frac{\partial p}{\partial t} + \eta S_E, \end{aligned} \quad (3)$$

где индекс  $i = 1$  относится к  $H_2$ ,  $i = 2$  – к  $SiCl_4$ ,  $i = 3$  – к воздуху,  $i = 4$  – к кварцу,  $p$  – абсолютное давление,  $T$  – абсолютная температура,  $\rho_i$  – плотность соответствующей среды,  $\rho_1, \rho_2, \rho_3$  вычисляются с помощью уравнения идеального газа,  $\rho_4 = \text{const}$ ,  $\vec{V}_i$  – вектор скорости соответствующей среды,  $S_E$  – мощность, индуцируемая разрядом,  $\eta$  – доля выделяемой мощности, идущая на нагрев газа посредством теплопроводности и конвекции,  $\tau_i$  – тензор напряжений, связанный со скоростями деформаций обобщенной гипотезой Ньютона  $\tau_i = \mu_{ie}(\nabla \vec{V}_i + (\nabla \vec{V}_i)^T - \frac{2}{3} \delta \nabla \vec{V}_i)$ ,  $\mu_{ie}, \lambda_{ie}$  – эффективные вязкость и теплопроводность сред соответственно,  $\mu_{ie} = \mu_i + \mu_{it}$ ,  $\lambda_{ie} = \lambda_i + \lambda_{it}$ ,  $\mu_i, \lambda_i$  – ламинарные вязкость и теплопроводность,  $\mu_{it}, \lambda_{it}$  – турбулентные (вихревые) вязкость и теплопроводность, связанные между собой через турбулентное число Прандтля и определяемые по выбранной модели турбулентности [4].

Для кварцевых стенок реактора решается только уравнение энергии, сводящееся для твердых стенок к уравнению теплопроводности. Отметим, что газы в задаче считаются сжимаемыми жидкостями. Система уравнений (1)–(3) замыкается транспортной SST-моделью турбулентности Ментера. Эта модель является комбинацией  $k$ - $\omega$ -модели (более точное описание течений вблизи стенок) и  $k$ - $\epsilon$ -модели (моделирование течений вдали от твердых границ).

Одна из проблем моделирования поставленной задачи заключается в адекватной постановке граничных условий. В эксперименте ре-

актор охлаждается естественным путем – находится в комнате со стандартными атмосферными условиями. Для моделирования теплообмена реактора с окружающей средой реактор рассматривается вместе с некоторой внешней областью, граничные условия на которой устанавливаются вариативно с последующей проверкой на соответствие численного решения с экспериментальным в контрольных зонах. В математической модели рассматриваются 2 варианта постановки граничных условий на внешнюю область:

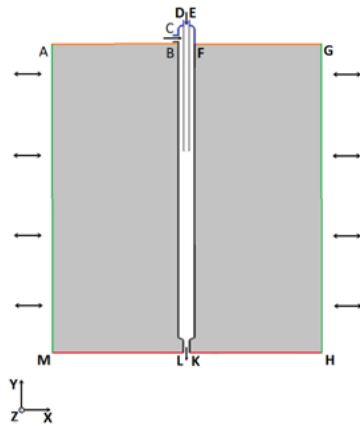
1. Во входные сечения  $A'M', H'G'$  поступает воздух со скоростью  $U_n = 0.001$  м/с ( $U_n$  – проекция скорости на нормаль к поверхности) при комнатной температуре в 293 К. Выход реализуется через сечения  $AB, FG$ . Через сечения  $CD, EF, AA', M'M, ML, KH, HH', G'G$  потоки массы и тепла равны 0 (рис. 2).

2. Через границы  $AM, HG$  реализуются свободные потоки воздуха при температуре 293 К и давлении в 1 атмосферу. Границы  $AB, CD, EF, FG, HK, LM$  изолируют расчетную область от потоков массы и тепла (рис. 3).

В сечение  $BC$  поступает  $H_2$  при объемном расходе в  $3.4 \cdot 10^{-7}$  м<sup>3</sup>/с при температуре 293 К. В сечение  $DE$  поступают  $H_2, SiCl_4$  в объемном соотношении 4.5:1 соответственно, при температуре 293 К. Объемный расход смеси через сечение  $DE$  составляет  $3.5 \cdot 10^{-6}$  м<sup>3</sup>/с. Давление в реакторе 667 Па.

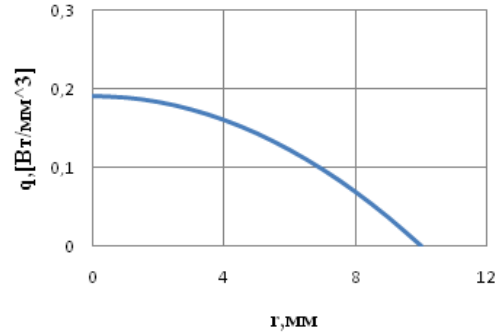
Для моделирования образующейся плазмы в реакторе создается источник энергии. Область выделения энергии – цилиндр, в основании которого окружность с радиусом  $R = 0.01$  м, высотой  $H = 0.03$  м. Плотность выделения энергии задана формулой (4), где  $r$  – радиус реактора (рис. 4):

$$q = \frac{1800}{\pi R^2 H} - \frac{1800}{\pi R^4 H} r^2. \quad (4)$$



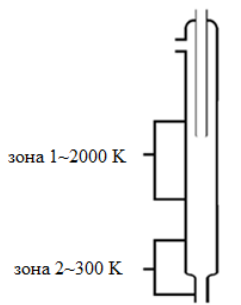
Ко второму варианту граничных условий

Рис. 3



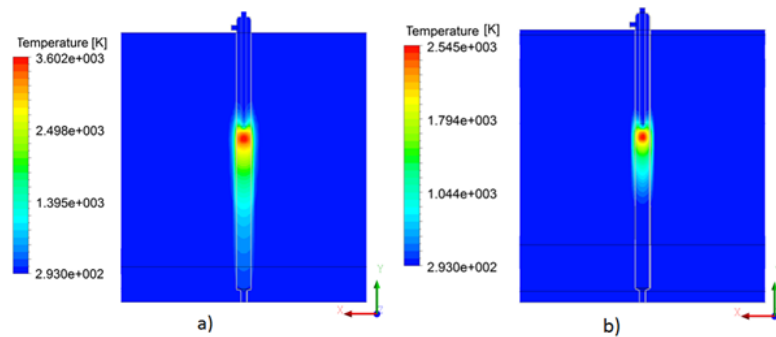
Распределение плотности выделяемой энергии по радиусу реактора

Рис. 4



Температурные зоны реактора

Рис. 5



Поля распределения температур в реакторе, а) соответствует первому варианту граничных условий, б) соответствует второму варианту граничных условий

Рис. 6

Плотность выделения энергии задается так, чтобы суммарная величина в области выделения энергии соответствовала экспериментальным данным 900 Вт.

Идентифицируемой величиной в системе (1)–(3) является коэффициент  $\eta$ , который показывает долю выделяемой мощности, затрачиваемую на процессы переноса тепла посредством теплопроводности и конвекции без учета излучения ( $0 < \eta < 1$ ). Искомую величину следует подобрать таким образом, чтобы решение системы (1)–(3) максимально совпадало с измеренной в физическом эксперименте температурой, приведенной на рис. 5.

### Основные аспекты решения задачи

Сеточная модель построена с использованием сеточного генератора Ansys ICEM CFD; максимальное количество узлов в численных исследованиях составляло около 700 000. Численное решение задачи производилось в пакете гидрогазодинамики Ansys CFX, в котором решение системы (1)–(3) базируется на методе контрольных объемов.

Задача решалась на четырехпроцессорном вычислительном узле с 12 Гб оперативной памяти. Распараллеливание задачи производилось методом декомпозиции областей. При указанных условиях решение занимало около суток.

Моделирование процесса нагревания потока газов в реакторе производилось для двух вариантов граничных условий в зависимости от разных коэффициентов мощностей  $\eta = 0.05$ ;  $\eta = 0.1$ ;  $\eta = 0.2$ .

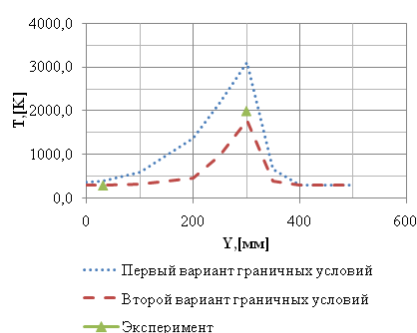
Математическая модель строилась в гомогенной постановке задачи и включала в себя 4 различные среды – 3 жидкости ( $H_2$ ,  $SiCl_4$ , воздух) и твердая среда (кварц). Задаваемые в математической модели теплофизические и транспортные характеристики этих сред отображены в таблице при использовании [5, 6].

### Результаты моделирования

На рис. 6 приведены температурные поля, полученные по результатам двух численных экспериментов, соответствующих первому и второму вариантам постановки граничных условий.

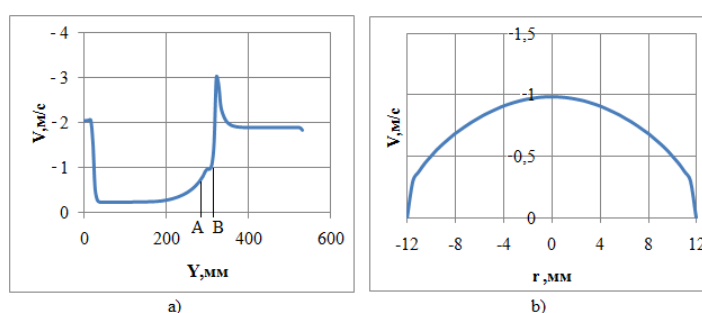
Таблица

Показатели	H <sub>2</sub>	SiCl <sub>4</sub>	Воздух	Кварц
Молярная масса – М, [г/моль]	2.016	168	28.96	1
Плотность – ρ, [кг/м <sup>3</sup> ]	-	-	-	4200
Теплоемкость при постоянном давлении – C <sub>p</sub> , [Дж/кг·К]	58000	$101.53 + 6.87 \cdot 10^{-3} \cdot T - 11.51 \cdot 10^{-5} \cdot T^{-2}$	1004.4	500
Динамическая вязкость – ν, [Па·с]	$8.8 \cdot 10^{-6}$	0.0005548	$1.831 \cdot 10^{-5}$	-
Коэффициент теплопроводности – λ, [Вт/м·К]	0.1809	$0.02 + 0.001 \cdot (T - 293)$	0.0261	0.8



Температура на боковой стенке реактора

Рис. 7



Распределение скоростей потока газов, а) по длине реактора, б) по радиусу реактора

Рис. 8

Вариация граничных условий проведена в связи с ограниченностью исходных данных по температуре стенки реактора. Данные из физического эксперимента дают лишь максимальное значение температур в двух областях: зона 1, соответствующая температуре разрушения кварца, и зона 2, соответствующая температуре плавления резинового жгута.

Полученные данные показывают, что при моделировании реактора с первым вариантом граничных условий результаты по полю температур в зонах 1, 2 не стыкуются с экспериментом. Более детальная оценка граничных условий приведена на рис. 7.

В связи с несоответствием температур физического эксперименту при моделировании с первым вариантом граничных условий дальнейшие результаты приведены для вычислительных экспериментов со вторым вариантом граничных условий.

Результаты по скоростям смеси в реакторе приведены на рис. 8.

На рис. 8а показано распределение скоростей по оси 1 (рис. 9). Ось 1 – центральная ось реактора. Зона АВ показывает распределение скоростей в области образующейся плазмы. На

рис. 8б показано распределение по оси 2, которая перпендикулярна оси 1 и проходит через точку с максимальной температурой газа в реакторе.

С физической точки зрения для процесса конверсии наиболее интересна зона, в точках которой температура превышает значение 2000 К. Массовый расход вещества SiCl<sub>4</sub>, поступающего в эту зону, равен  $4.4 \cdot 10^{-6}$  кг/с (рис. 9), а время нахождения вещества в указанной зоне составляет 0.006 с, что является характерным временем для протекания реакции.

Для исследования сходимости результатов проведено моделирование для сеточных моделей в 175 000, 350 000 и 700 000 узлов. На рисунках 10,11 представлены распределения температур и скоростей смеси для указанных сеточных моделей.

Для возможного повышения качества процесса конверсии SiCl<sub>4</sub> проведено параметрическое исследование влияния величины мощности, закачиваемой в реактор, на газодинамику течения смеси.

На рис. 12а, б показаны зависимости температур и скоростей потока смеси в зоне образования плазмы от радиуса реактора по оси 2. На

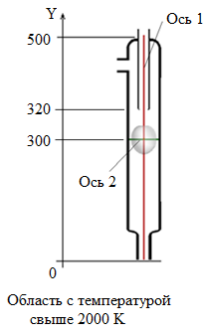


Рис. 9

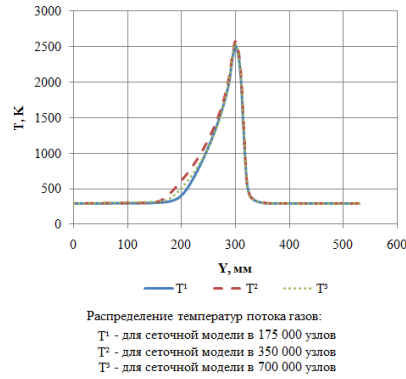


Рис. 10

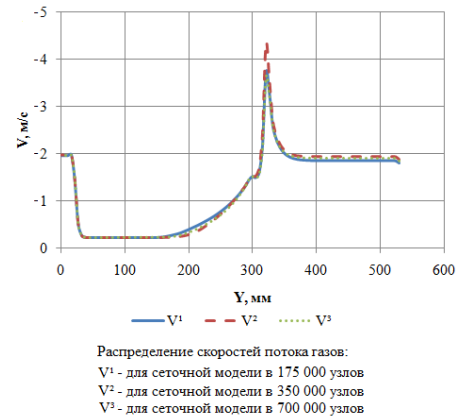
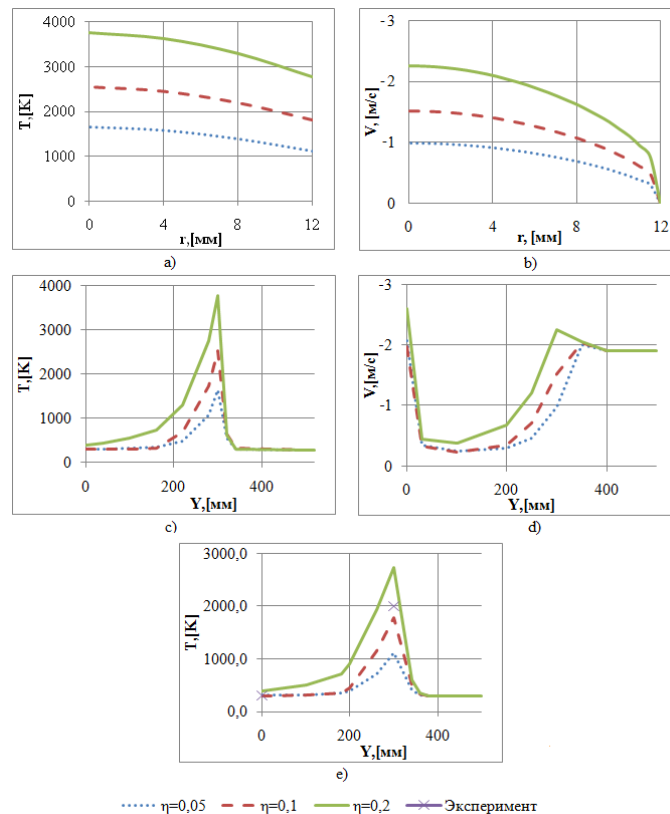


Рис. 11



Газодинамические параметры реактора в результате параметрического исследования

Рис. 12

рис. 12с, d показаны зависимости температур и скоростей потока смеси от длины реактора по оси 1. На рис. 12е показаны распределения температур по стенке реактора.

Из рис. 12с видно, что максимальная температура газа в потоке для коэффициента мощности  $\eta=0.05$  не достигает значения 2000 К, а следовательно, при таком количестве закачиваемой мощности в реактор тетрахлорид кремния не вступает в реакцию с водородом.

На рис. 12е температура стенки реактора при коэффициенте мощности  $\eta=0.2$  превышает температуру разрушения кварца. В данном случае реактор нуждается в дополнительном охлажде-

нии для реализации процесса конверсии тетра-хлорида кремния.

### Заключение

В работе реализована методика моделирования плазмохимического реактора с применением программного комплекса Ansys CFX, позволяющая проводить параметрические исследования и повысить информативность исследуемых процессов.

Применение методики позволило детализировать процесс конверсии газов, что невозможно в физическом эксперименте, определить поля рас-

предела температур и скоростей в реакторе, получить количественные данные о свойствах высокотемпературной зоны, с помощью которых можно количественно конкретизировать механизм химической реакции, протекающей в реакторе.

*Список литературы*

1. Гусев А.В., Суханов А.Ю., Корнев Р.А. Исследование процесса конверсии тетрахлорида кремния в водородной плазме СВЧ-разрядов пониженного дав-

ления // 6 Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии. 2011. С. 303–304.

2. Бабат Г.И. Безэлектродные разряды и некоторые связанные с ними вопросы // Вести электропромышленности. 1942. № 2. С. 3–20.

3. Франк Д.А. Плазма – четвертое состояние вещества. М.: Атомиздат, 1975. 159 с.

4. Нигматулин Р.И. Динамика многофазных сред. Ч. 1. М.: Наука, 1987. 464 с.

5. Русанов В.Д., Фридман А.А., Шолин Г.В. Физика химически активной плазмы. М.: Наука, 1984. 414 с.

6. Фурман А.А. Неорганические хлориды. М.: Химия, 1980. 416 с.

**MATHEMATICAL SIMULATION OF GAS-DYNAMIC AND THERMAL PHENOMENA IN PLASMA-CHEMICAL CONVERSION OF  $\text{SiCl}_4$  IN A MICROWAVE DISCHARGE**

*V.A. Shaposhnikov, A.V. Gusev, A.Yu. Sukhanov, R.A. Kornev, L.V. Shabarova*

A microwave plasma-chemical reactor has been simulated using the ANSYS CFX software package, which allows one to carry out parametric investigations and to increase the information content of the processes studied. The investigation results on gas-dynamic and heat-exchange processes in silicon tetrachloride plasma-chemical conversion are presented. The studies have been conducted using modern computer technologies of hydro- and gas-dynamics. It has been possible to get velocity and temperature fields in detail, as well as the gas consumption in the plasma area and to determine the gas heating energy consumption, the gas temperature and the residence time in the reaction zone.

*Keywords:* reactor, numerical experiment, gas conversion, plasma, turbulence, silicon tetrachloride.