



МАТЕМАТИЧНЕ МОДЕЛЮВАННЯ ГІДРОДИНАМІЧНИХ ТА ТЕПЛОВИХ ПРОЦЕСІВ ПРИ ВИРОЩУВАННІ КРИСТАЛІВ ІЗ РОЗПЛАВУ

В.Ф. Демченко¹, О.П. Федоров², І.В. Шуба¹, Ю.А. Асніс¹, А.Б. Лісний³

¹Інститут електрозварювання ім. Є.О. Патона НАН України.

03680, м. Київ-150, вул. Боженко, 11. E-mail: office@paton.kiev.ua

²Інститут космічних досліджень НАН України та Державного космічного агентства України.

03680, м. Київ, просп. Академіка Глушкова, 40, корп. 4/1. E-mail: ikd@ikd.kiev.ua

³ISF – Welding and Joining Institute, RWTH – Aachen University.

52062, Aachen, Pontstr., 49. E-mail: office@isf.rwth.aachen.de

Запропонована математична модель теплових і гідродинамічних процесів при вирощуванні кристалів методом безтигельної електронно-променевої плавки та за схемою Бріджмена. В якості препаратів для формування кристалів розглядаються кремній (метод плаваючої зони) та прозора речовина суццінонітрил (схема Бріджмена). Математична модель ґрунтується на повній системі рівнянь руху в'язкої нестисливої рідини та рівнянні конвективно-кондуктивного переносу енергії в осесиметричному наближенні. В моделі враховуються наступні силові фактори, що спричинюють рух розплаву: підйомна сила Архімеда; термокапілярна сила Марангоні; вібрація елементів технологічного обладнання. Методом математичного моделювання проведено порівняльний аналіз гідродинамічних і теплових процесів при вирощуванні кристалів за схемою Бріджмена та методом зонної плавки. Вивчені особливості гідродинамічного стану розплаву при формуванні кристалів в земних умовах та в умовах мікрогравітації як за відсутності вібраційних збурень, так і при накладанні аксіальної вібрації по гармонічному закону. Показано, що технологічні процеси вирощування кристалів із розплаву є особливо чутливими до вібраційних збурень у тому разі, коли сумарне прискорення (фонове + вібраційне) змінює знак впродовж одного періоду вібрації. У такому випадку можлива релей-тейлорівська втрата стійкості руху рідкої фази, яка неминує виникає при вирощуванні кристалу за схемою Бріджмена в умовах невагомості. Вібрація невисокої інтенсивності може слугувати знаряддям для пригнічення вторинних вихорів поблизу фронту кристалізації при вирощуванні кристалів в земних умовах як методом зонної плавки, так і методом Бріджмена. Результати розрахунків порівнюються з окремими експериментальними даними. Бібліогр. 13, табл. 1, іл. 8.

Ключові слова: вирощування кристалів; зонна плавка; схема Бріджмена; гідродинаміка; вібрація; мікрогравітація; математичне моделювання

Вступ. Гідродинамічні процеси, що перебігають в рідкій фазі при вирощуванні кристалів із розплавів, суттєво впливають на комплекс фізико-хімічних властивостей кристалічних матеріалів. Рух розплаву в різних технологічних схемах вирощування кристалів обумовлюється дією об'ємних і поверхневих сил. В якості об'ємної сили зазвичай виступає підйомна сила Архімеда, яка залежить від теплового стану рідкої фази та величини прискорення, що діє на розплав. До гравітаційного прискорення можуть додаватися також вібраційні прискорення, які виникають в результаті вібрації елементів технологічного обладнання або за рахунок створення примусових вібрацій, які використовуються як один із засобів керування процесом кристалізації. Особливий інтерес до проблеми впливу вібрації на гідродинаміку розплаву був викликаний експериментами по вирощуванню кристалів в умовах мікрогравітації, коли на фоні близької до нуля сили тяжіння вібраційні прискорення суттєво впливають на гідродинаміку рідкої фази [1–3].

Характерна відмінність вібраційних прискорень від фонового прискорення сили земного тяжіння полягає у тому, що вібраційні прискорення є різнополярними, тобто змінюють напрям на протязі одного періоду вібрації. Інтерес до проблеми впливу вібрації на формування кристалічних матеріалів не обмежується лише космічними додатками. Принципово важливим видається з'ясування умов ефективного використання вібраційного впливу як технологічного засобу управління процесом твердіння. У ряді робіт [4–7] теоретично і експериментально продемонстрована можливість управління процесами тепломасопереносу в розплаві шляхом накладення низькочастотних вібрацій на матеріал, що кристалізується. При вирощуванні кристалів методом безтигельної зонної плавки наряду із дією об'ємної сили гравітаційного чи вібраційного походження на вільній поверхні розплаву виникає термокапілярна поверхнева



сила Марангоні, яка в умовах невагомості може слугувати одним із визначальних силових факторів, що обумовлюють структуру і інтенсивність гідродинамічних потоків в рідкій фазі.

Предметом цього дослідження є порівняльний аналіз теплової і гідродинамічної обстановки при вирощуванні кристалів за схемою Бріджмена і методом зонної плавки в земних умовах і на борту космічного апарату за наявності вібраційного впливу на розплав і без нього. Застосовувалися методи математичного моделювання, результати порівнювали з експериментальними даними, отриманими авторами для прозорої модельної речовини — сукцінонітрилу (метод Бріджмена), а також кремнію (метод плаваючої зони).

Технологічні схеми цих процесів показані на рис. 1. При зонній плавці (рис. 1, а) в зразку L за допомогою нагрівача 2 формується розплавлена зона 3, яка, переміщуючись разом з нагрівачем вздовж твірної зразка, забезпечує плавлення заготовки та кристалізацію розплаву. У методі Бріджмена (рис. 1, б) плавлення і кристалізація розплаву 3 здійснюється за допомогою градієнтного пристрою, який складається з нагрівача 5, холодильника 8 і розташованого між ними теплоізолюючого шару 7. Нагрівач при зонній плавці і градієнтний пристрій у схемі Бріджмена переміщуються із заданою швидкістю v стосовно зразка так, як показано на рис. 1.

Математична модель. В осесиметричному наближенні сумісний конвективно-кондуктивний переніс енергії в системі кристал–розплав описується рівнянням

$$c\rho\left(\frac{\partial T}{\partial t} + V_r \frac{\partial T}{\partial r} + V_z \frac{\partial T}{\partial z}\right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \times \left(r\lambda(T) \frac{\partial T}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda(T) \frac{\partial T}{\partial z}\right), \quad r, z \in \Omega, \quad (1)$$

де T — температура; $\vec{V} = \{V_r, V_z\}$ — вектор швидкості руху розплаву; c, ρ, λ — теплофізичні властивості матеріалу; $\{r, z\}$ — циліндричні координати. Рівняння (1) інтегрується в прямокутнику $\Omega = \{0 < r < L, 0 < z < R\}$, який охоплює розплав, кристал і заготовку. При моделюванні схеми Бріджмена в розрахункову область включається також стінка ампули. Сформулюємо граничні умови. При $r = 0$ має місце симетрія температурного поля

$$\left.\frac{\partial T}{\partial r}\right|_{r=0} = 0, \quad (2)$$

а при $r = R$ — умова теплообміну кристалу з нагрівачем і навколишнім середовищем

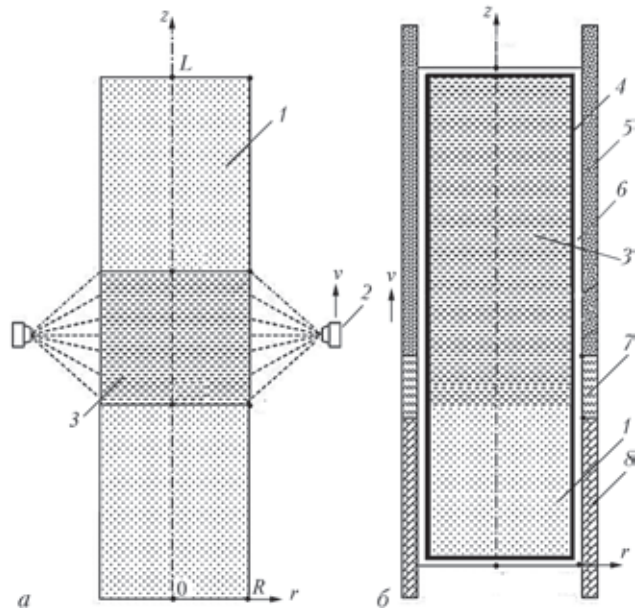


Рис 1. Схеми вирощування кристалів методом зонної плавки (а) і методом Бріджмена (б)

$$\lambda \left.\frac{\partial T}{\partial r}\right|_{r=R} = q(z, t) + \alpha(z, t) \times \left[T(R, z, t) - T_h(z, t)\right] - \varepsilon\sigma_0(T^4(R, z, t) - T_c^4), \quad (3)$$

де $q(z, t)$ — щільність теплового потоку, який надходить до поверхні зразка від зовнішнього нагрівача (рис. 1, а); $\alpha(z, t)$ — коефіцієнт теплопередачі між стінкою ампули 4 і нагрівачем 5 (холодильником 8); $T_h(z, t)$ — температура нагрівача (холодильника); ε — ступінь чорноти; σ_0 — постійна Стефана–Больцмана; T_c — температура зовнішнього середовища. У схемі Бріджмена приймається до уваги лише теплопередача через газову щілину б. Коефіцієнт теплопередачі α розраховувався як величина зворотна термічному опору газового зазору, а на границі з ізолятором коефіцієнт теплопередачі α покладался рівним нулю. Залежність характеристик T_h, q і α від часу t і аксіальної координати z обумовлена переміщенням нагрівача вздовж твірної зразка. При моделюванні процесів переносу енергії в схемі Бріджмена рівняння (1) інтегрується в прямокутнику $\Omega = \{0 < r < R, 0 < z < L\}$, який охоплює розплав, кристал і заготовку, що плавиться. В розрахункову область включається також стінка ампули. Останнє пов'язано з тим, що коефіцієнт теплопровідності скляної ампули є суттєво вищим за теплопровідність препарату сукцінонітрил, а тому тепловий потік через стінку ампули є вагомою складовою в енергетичному балансі градієнтного пристрою. Процес зонної плавки здійснюється у вакуумній камері. При цьому розплавлена зона утримується силами по-



верхнього натягу, а в якості джерела енергії використовується кільцевий електронно-променевої нагрівач. Вважається, що на торцевих поверхнях зразка теплообмін з навколишнім середовищем відсутній:

$$\left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=0} = 0, \quad \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=L_z} = 0. \quad (4)$$

На фронтах кристалізації і плавлення формуються умови ідеального контакту між рідкою і твердою фазами, оскільки при швидкостях кристалізації 1...10 мкм/с виділенням прихованої теплоти можна знехтувати, порівнюючи із питомими тепловими потоками кондуктивного переносу енергії. При моделюванні схеми Бріджмена в початковий момент часу $t = 0$ задається початкове положення системи нагрівач–ізолятор–холодильник, а в схемі плаваючої зони — положення нагрівача відносно твірної зразка.

Гідродинамічні процеси в розплаві описуються системою рівнянь Нав'є–Стокса в наближенні Буссінеска:

$$\frac{\partial V_r}{\partial t} + V_r \frac{\partial V_r}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_r}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial r} + \nu \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial V_r}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 V_r}{\partial z^2} - \frac{V_r}{r^2} \right); \quad (5)$$

$$\frac{\partial V_z}{\partial t} + V_r \frac{\partial V_z}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_z}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial z} + \nu \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial V_z}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 V_z}{\partial z^2} \right) + F_z; \quad (6)$$

$$\frac{\partial V_z}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r V_r) = 0, \quad (7)$$

де P — тиск; ν — коефіцієнт кінематичної в'язкості; $F_z = g\beta_T T$ — підйомна сила Архімеда; $g = g(t)$ — прискорення; β_T — коефіцієнт об'ємного розширення розплаву. Рівняння (5)–(7) інтегруються в області, яка визначається поточною формою фронтів плавлення і кристалізації. На твердих границях області задаються умови прилипання і непроникнення, а при $r = 0$ — умова симетрії поля швидкостей. У схемі зонної плавки будемо вважати вільну поверхню такою, що не деформується і тоді граничні умови на цій поверхні можна записати у вигляді:

$$V_r \Big|_{r=R} = 0; \quad \nu \frac{\partial V_r}{\partial z} \Big|_{r=R} = -\frac{1}{\rho} \beta_\sigma \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=R}, \quad (8)$$

де $\beta_\sigma = d\sigma/dT$, $\sigma = \sigma(T)$ — коефіцієнт поверхневого натягу. Прискорення $g = g(t)$ представимо у вигляді суми $g(t) = g_0 + g_v(t)$, де g_0 — фонове; $g_v(t)$ — вібраційне прискорення. Будемо вважати, що вібраційні коливання здійснюються уздовж осі ампули і є гармонічними, так що $g_v(t) = -4A\pi^2\omega^2 \sin 2\pi\omega t$, де ω — частота; A — амплітуда коливань. Амплітуда вібраційного прискорення $g_v^{(A)}$ визначається наступним чином: $g_v^{(A)} = 4A\pi^2\omega^2$. Звідси випливає, що вібраційні прискорення прямо пропорційні амплітуді коливань і квадратично залежать від частоти вібрації. Ця закономірність справедлива для довільного закону періодичних коливань, які зумовлюють вібраційні прискорення. В залежності від амплітуди і частоти вібраційних коливань амплітуда вібраційних прискорень може бути як меншою, так і більшою за фонове прискорення g_0 . В останньому випадку сумарне прискорення $g(t)$ на протязі одного періоду вібрації двічі змінює знак. Остання обставина, на яку дослідники раніше не звертали уваги, є суттєвою, оскільки зміна знаку вібраційного прискорення може викликати нестійкість руху розплаву по типу релей-тейлоровської нестійкості. Тому в цій роботі при проведенні обчислювальних експериментів з впливу вібрації на гідродинаміку розплаву окремо розглядалися два діапазони віброприскорень, в яких відповідно: сумарне прискорення $g(t)$ залишається знакопостійним ($g_v^{(A)} < g_0$); $g(t)$ змінює знак ($g_v^{(A)} > g_0$) протягом одного циклу вібрації. Ведемо поняття коефіцієнта k вібраційного підсилення фонового прискорення, визначивши його наступним чином $k = \frac{g_v^{(A)}}{g_0}$. Згідно цього означення коефіцієнт k вказує у скільки разів амплітуда вібраційного прискорення перевищує фонове прискорення. Очевидно, що величина сумарного прискорення змінює знак при $k > 1$.

Виконаємо деякі числові оцінки. При фіксованій амплітуді A коливань платформи частота коливань, яка забезпечує задану величину коефіцієнта вібраційного підсилення, може бути роз-

рахована за формулою $\omega = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{kg}{A}}$. Розрахункові дані стосовно частот вібрації ω_3 і ω_m , які відповідають різним значенням коефіцієнта k для двох величин амплітуд вібраційних коливань $A = 0,1$, $A = 0,05$ см та двох значень фонового прискорення ($g_0 = 9,8$ м/с² — прискорення земного тяжіння і $g_0 = 10^{-2}$ м/с² — прискорення мікрогравітації) наведені в таблиці.

Як випливає із таблиці, в земних умовах при частотах вібрації в діапазоні до 50 Гц можна досягти широкого спектру величин вібраційних при-



Залежність коефіцієнта вібраційного підсилення фонового прискорення від амплітуди та частоти вібрації

k	A, см			
	0,05		0,1	
	ω_3 , Гц	ω_M , Гц	ω_3 , Гц	ω_M , Гц
0,25	11,14652	0,356063	7,88178	0,251774
0,5	15,76356	0,503548	11,14652	0,356063
0,75	19,30634	0,616718	13,65164	0,436086
1,0	22,29304	0,712125	15,76356	0,503548
2,0	—	—	22,29304	—

скорень, у тому числі і таких, які суттєво перевищують фонове прискорення земної гравітації. Це відкриває експериментальну можливість імітації в земних умовах дії вібраційних збурень, подібних тим, які мають місце при орбітальному польоті.

Результати чисельних експериментів. *Метод плаваючої зони.* Теплові та гідродинамічні процеси при зонній плавці вивчалися при переплаві зразка кремнію зі швидкостями протяжки джерела електронно-променевого нагріву $v = 1...10$ мкм/с. Розподіл щільності теплового потоку на поверхні зразка задавався відповідно до експериментальних даних роботи [8], отриманих методом розрізного анода. Чисельний розв'язок задачі, описаний рівняннями (1)–(8), знаходився за допомогою сумісного лагранжево-ейлерового методу [9, 10]. Обчислювальними експериментами встановлено, що висота розплавленої зони визначається потужністю електронно-променевого нагріву і практично не залежить від швидкості v переміщення джерела нагріву у вказаному діапазоні. Останнє пояснюється малими значеннями теплового критерію Пекле, розрахованого за значеннями v . Висота розплавленої зони на боковій поверхні зразка становить 10 мм, що з точністю до 5 % збігається з висотою, виміряною експериментально. На рис. 2 показані температурні поля і поля швидкостей руху розплаву при вирощуванні монокристала кремнію методом плаваючої зони в земних умовах і в умовах малої гравітації $g_0 = 10^{-2} \text{ м/с}^2$.

У земних умовах рух розплаву формується переважно під впливом сили Архімеда (рис. 2, а). На вільній поверхні виникає висхідний потік, який поблизу фронту плавлення розвертається в радіальному напрямку, утворюючи тороїдальний вихор (схематично показаний великими стрілками на збільшеному фрагменті розплавленої зони), центр якого зміщений до фронту плавлення. У земних умовах найбільша швидкість течії $\max |\vec{V}| = 0,03 \text{ м/с}$ спостерігається на вільній поверхні в зоні максимального тепловиділення електронно-променя.

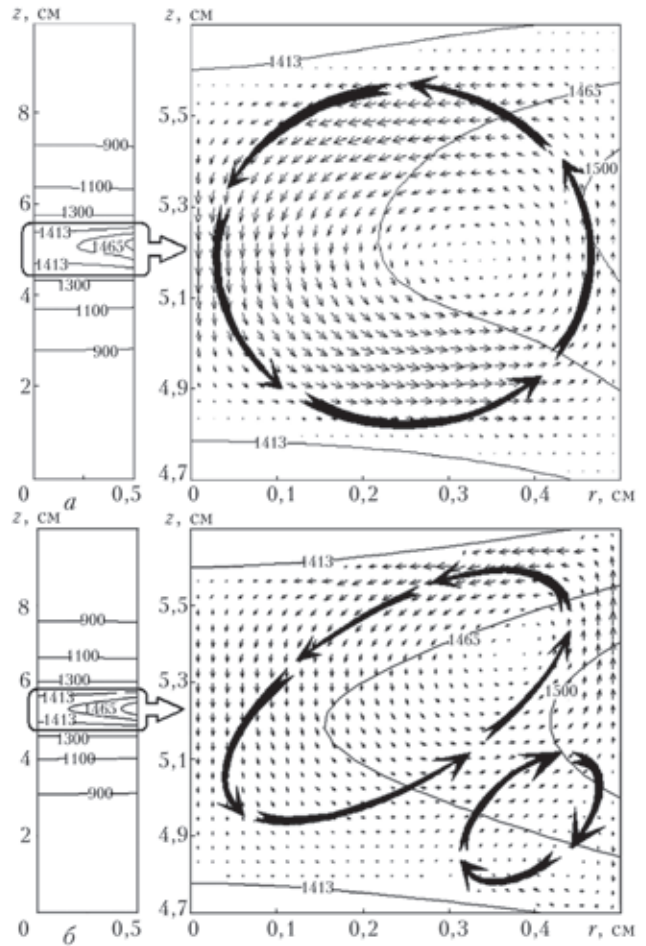


Рис. 2. Температурне поле і плин розплаву при формуванні монокристала кремнію методом плаваючої зони: а — земні умови; б — мікрогравітація

Рух рідкого кремнію в умовах малої гравітації і відсутності вібрації формується за рахунок конкурентної взаємодії термогравітаційної і термокапілярної сил, внаслідок чого в розплавленій зоні поблизу фронту кристалізації утворюється вторинний вихор (рис. 2, б). В цьому випадку максимальна швидкість руху розплаву знижується на два порядки, висота розплавленої зони зменшується на 5 % і утворюється більш опуклий фронт кристалізації. Якщо нагрівач переміщувати у напрямку дії фонового прискорення, то вторинний вихор локалізується поблизу фронту плавлення, завдяки чому слід очікувати підвищену фізичну однорідність кристалу, що вирощується.

Під постійною часу гідродинамічного процесу будемо розуміти час, необхідний для перебудови течії з одного усталеного стану в інший. Для чисельної оцінки постійної часу величина фонового прискорення миттєво змінювалася з 10^{-2} до $5 \cdot 10^{-2} \text{ м/с}^2$. Розрахунками встановлено, що при зонній плавці постійна часу τ_g складає величину порядку 1 с. При частотах вібрації, для яких період τ одного циклу вібрації є порівняним з τ_g , вібраційні збурення приводять до істотної зміни гідродинамічних по-

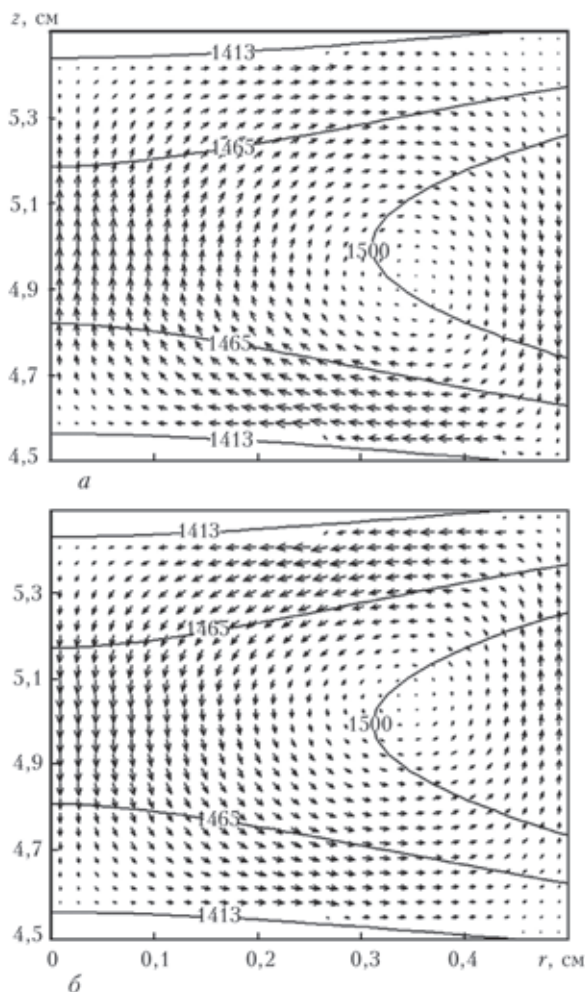


Рис. 3. Циркуляція розплаву кремнію в умовах малої гравітації: *a* — початок періоду вібрації; *b* — середина періоду

токів в розплавленій зоні. На рис. 3 наведені поля швидкостей руху розплаву кремнію при вирощуванні кристала методом плаваючої зони в умовах зниженої гравітації $g_0 = 10^{-2} \text{ м/с}^2$ при частоті вібрації $\omega = 0,2 \text{ Гц}$ і максимальній величині вібраційно-

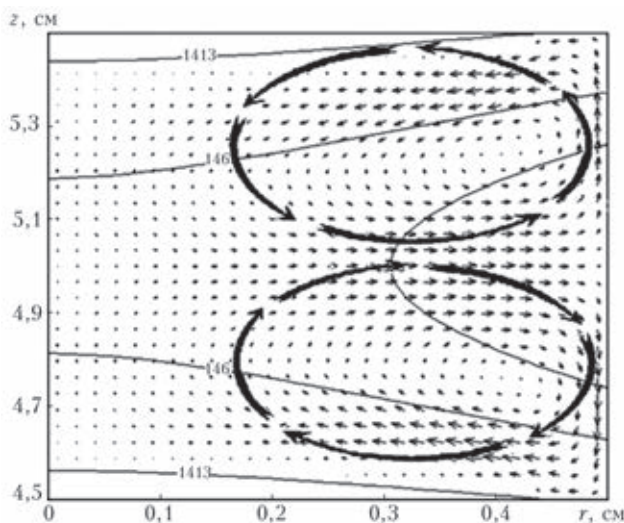


Рис. 4. Потіки розплаву при формуванні кристала кремнію методом зонної плавки в умовах мікрогравітації при частоті вібрації 10 Гц

го прискорення $0,04 \text{ м/с}^2$. При цій частоті $\tau \gg \tau_{g^2}$, внаслідок чого протягом одного періоду вібрації напрямок циркуляції вихору змінюється на протилежний. При більш високій частоті вібрації $\omega > 10 \text{ Гц}$ в умовах невагомості утворюється стаціонарний двоконтурний режим течії розплаву, аналогічний тому, який має місце за відсутності вібрації (рис. 4). Така структура потоків розплаву зумовлена дією поверхневої термогравітаційної сили Марангоні на вільній поверхні розплаву, яка направлена в протилежні сторони від її теплового центру.

Метод Бріджмена. Обрана схема методу Бріджмена (рис. 1, б) відповідає лабораторній установці, на якій виконувалися натурні експерименти. Числові значення параметрів, що входять в математичне описання, вибиралися наступними: $R = 7,5 \text{ мм}$, довжина нагрівача 100 мм, довжина ізолятора 10 мм, довжина холодильника 20 мм, температура нагрівача $85 \text{ }^\circ\text{C}$, температура холодильника $15 \text{ }^\circ\text{C}$. Термодинамічні і транспортні властивості сукцинонітрила вибиралися згідно даних робіт [11, 12].

Найбільший інтерес являють потоки розплаву поблизу фронту кристалізації, бо саме вони визначають стійкість росту кристалу і його морфологію. На рис. 5, *a* показані розрахункові лінії струму в

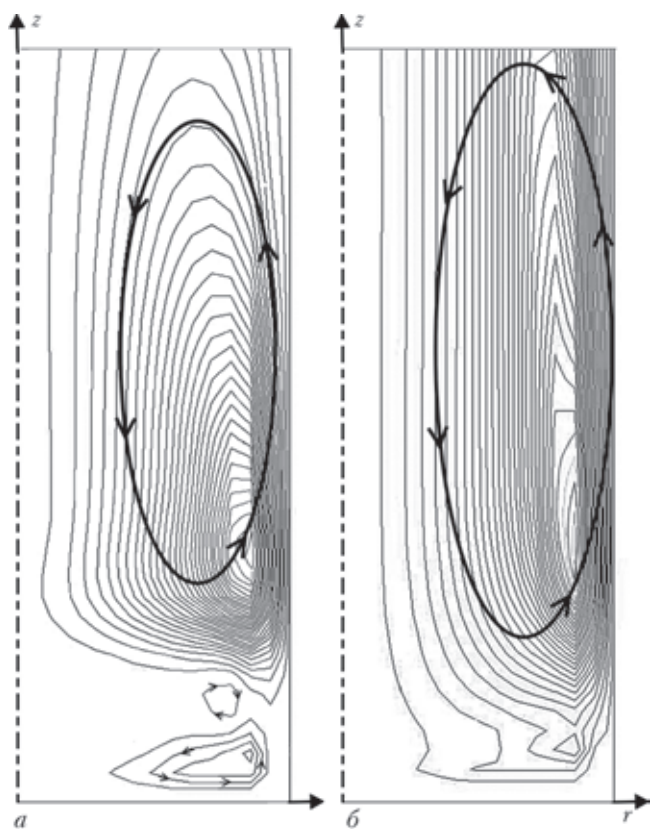


Рис. 5. Структура потоків розплаву в земних умовах вирощування кристалу сукцинонітрила методом Бріджмена: *a* — без вібрації; *b* — з вібрацією



розплаві до початку вібрації (земні умови вирощування), великими стрілками на цьому і наступних рисунках показано напрямок циркуляції вихорів. Внаслідок дії підйомної сили в рідкій фазі утворюється глобальна вихрова течія: поблизу стінки нагрівача розплав піднімається до верху ампули, а в осьовій частині ампули формується низхідний потік, спрямований до фронту кристалізації. При гальмуванні потоку розплаву поблизу фронту кристалізації формуються нестійкі слабоінтенсивні вторинні вихори, які періодично руйнуються і виникають знову. Виявлені в розрахунках нестационарні вторинні вихори спостерігали в експериментальній установці Бріджмена. Для цього в розплав сукцінонітрила вводилися маркери — спори лікоподію, рух яких фіксувався відеокамерою, розташованою в торці ампули. Маркери, які переміщувалися в розплаві, можна розділити на дві групи. У першій із них частинки переміщувалися по усьому об'єму розплаву, що відповідає циркуляції розплаву в глобальному вихровому потоці. Інша група маркерів здійснювала коливальні рухи поблизу фронту кристалізації, що може свідчити про існування вторинних вихорів, виявлених чисельним моделюванням. Спрощена експериментальна схема з відеокамерою в торці ампули не дає можливості отримати кількісні дані про швидкості потоків, однак характер руху частинок поблизу фронту свідчить про нестационарний характер руху розплаву і існування кількох контурів циркуляції поблизу фронту кристалізації.

При накладенні вібрації з частотою 11 Гц при $A = 0,1$ см і $k = 0,5$ вже на першому вібраційному циклі вторинні вихори, що утворилися до початку вібрації, руйнуються і формується одноконтурна схема циркуляції розплаву, яка підтримується в процесі подальших циклів вібрації (рис. 5, б). При цьому центр глобального вихору зміщується ближче до стінки ампули, а швидкості потоків в осьовій зоні розплаву істотно слабшають. З цією обставиною пов'язано зникнення осцилюючих вторинних вихорів поблизу фронту кристалізації. Таким чином, при певних параметрах примусова вібрація може слугувати як регуляризатор гідродинамічних потоків в розплаві.

Натурними і обчислювальними експериментами встановлено, що максимальна деформація фронту кристалізації внаслідок вібрації не перевищує 1 мм. Це обумовлено низькими значеннями коефіцієнта теплопровідності сукцінонітрилу і, відповідно, великою величиною постійної за часом процесу переносу тепла по кондуктивному механізму (3 хв), що на порядок перевершує період вібрації. Характерний розподіл темпера-

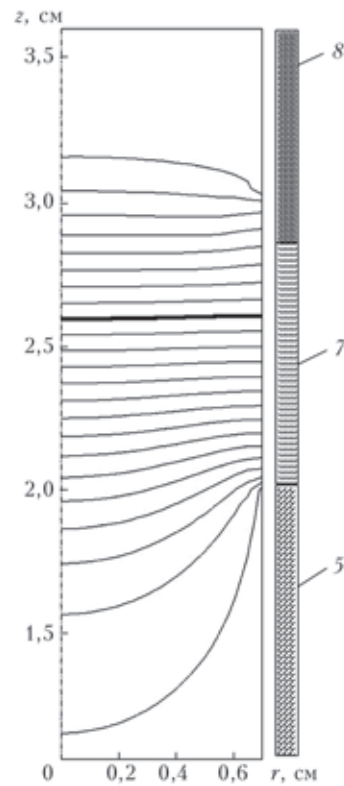


Рис. 6. Температурне поле в препараті, що кристалізується за схемою Бріджмена: 5, 7, 8 — див. на рис. 1, б

тури в препараті показано на рис. 6 де наведені ізотерми температурного поля з кроком в три градуси. Виділена лінія відповідає ізотермі кристалізації $T_{кр} = 85$ °С.

Якісно інша картина виникає при накладанні вібрації за відсутності гравітації. На рис. 7 представлені картини ліній струму в різні часи першого півперіоду вібраційного циклу при $\omega = 1$ Гц, $A = 0,1$ см. При зміні знаку віброприскорення в нижній частині розплаву зароджується вихор, що циркулює в напрямку протилежному напрямку обертання глобального вихору, який існував до зміни знаку віброприскорення. Новоутворений вихор поступово витісняє в верхню частину ампули первісний вихор аж до повного його зникнення. У другому півперіоді вібраційного циклу виникає аналогічний нестационарний плин рідкої фази, але з протилежним напрямком обертання новоутвореного вихору, який у такому випадку зароджується у верхній частині ампули. Досить кількох десятків циклів вібрації, щоб встановився періодичний режим течії розплаву. Описаний вплив вібрації на гідродинаміку розплаву є проявом квазістационарної релей-тейлорівської нестійкості руху рідкої фази в умовах неоднорідного розподілу температури і, відповідно, щільності розплаву в його об'ємі. Обчислювальним експериментом встановлено, що подібні гідродинамічні осциляції роз-

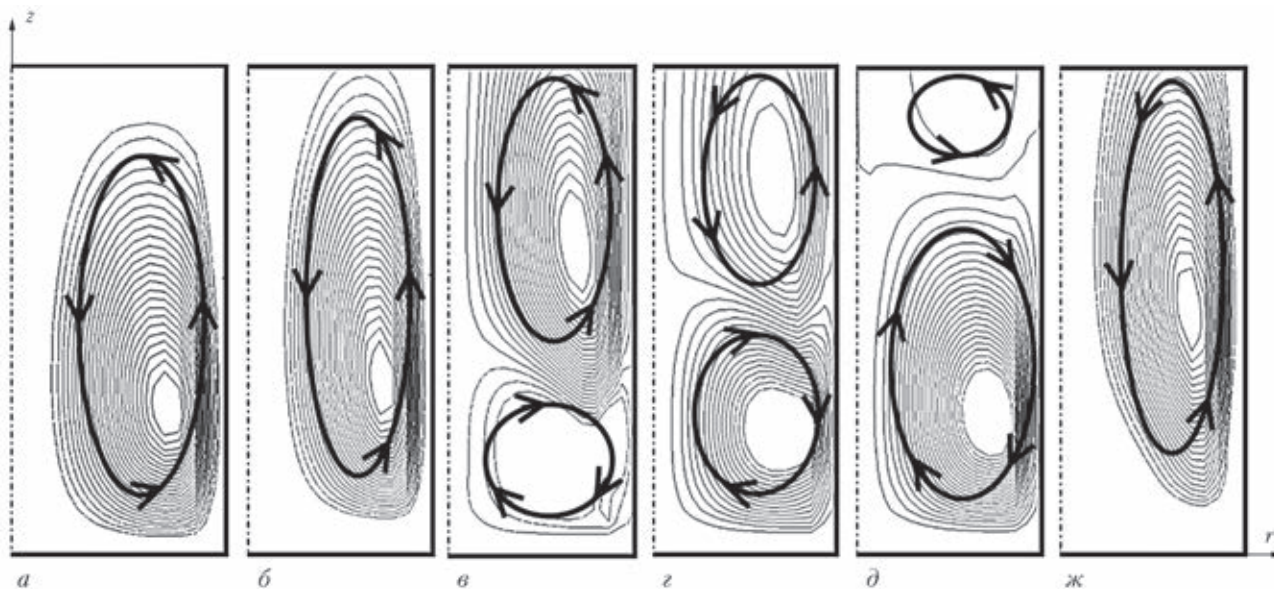


Рис. 7. Ізолінії функції струму в різні моменти часу першого півперіоду вібраційного циклу при вирощуванні кристалу за схемою Бріджмена в умовах невагомості при частоті вібрації 1 Гц та величинах вібраційного прискорення g_v , $\text{см}/\text{с}^2$: а — 3,9; б — 1,4; в — -0,6; г — -1,6; д — -3,2; ж — -3,9

плаву продовжують підтримуватися в діапазоні частот вібрації до 20 Гц.

Інакше формуються нестационарні гідродинамічні структури при вирощуванні кристалу суцїніонїтрилу за схемою Бріджмена в земних умовах за наявності вібрації з коефіцієнтом вібраційного підсилення прискорення земного тяжіння більшим за одиницю. При $A = 0,1$ см, $\omega = 22,29$ Гц згідно таблиці коефіцієнт вібраційного підсилення

дорівнює 2. За таких параметрів вібрації максимальні і мінімальні значення сумарного прискорення відповідно складають $-g_0$ і $3g_0$ ($g_0 = 9,8$ м/с² — прискорення сили земного тяжіння), тобто сумарне прискорення змінює знак на протязі одного вібраційного циклу і створюються умови для виникнення релей-тейлорівської нестійкості течії розплаву. На рис. 8, а–д послідовно показані картини ліній струму в розплаві в різні часи одного

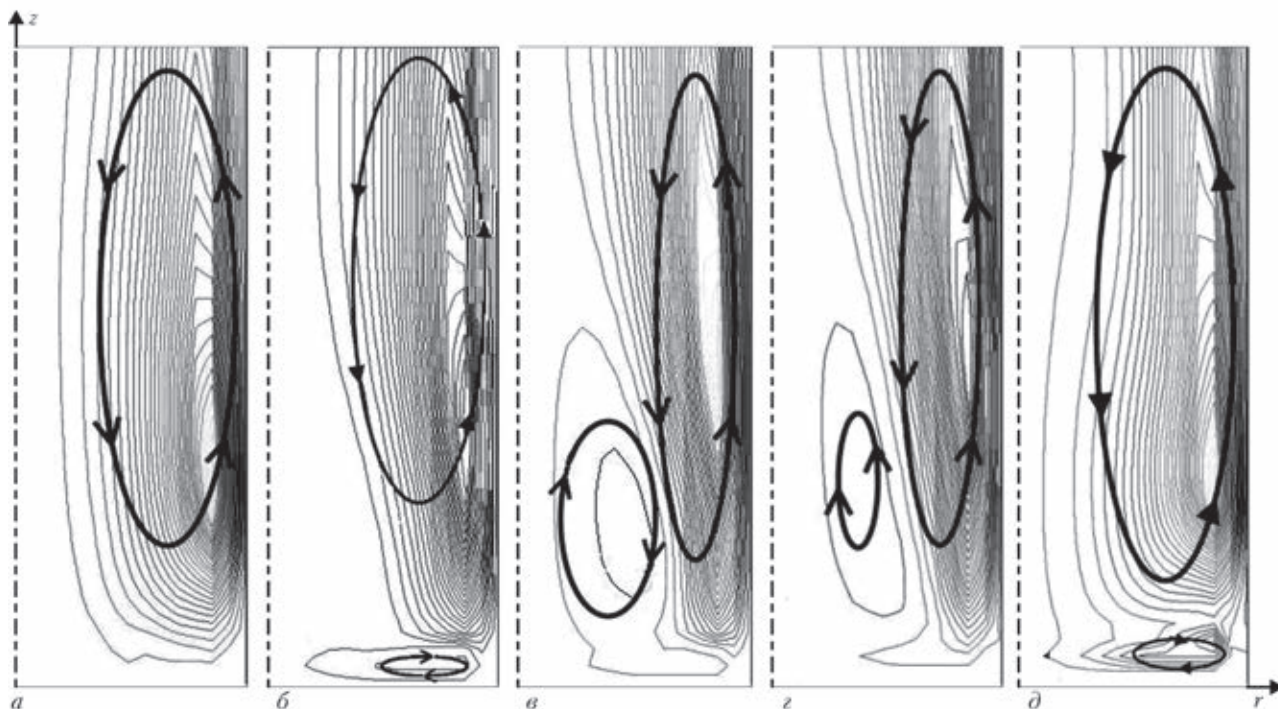


Рис. 8. Ізолінії функції струму в різні моменти часу одного вібраційного циклу при вирощуванні кристалу за схемою Бріджмена в земних умовах при частоті вібрації 22,29 Гц: а — $t = 0$, $g_v^{(A)} = 0$; б — $t = 7,5$ мс, $g_v^{(A)} = -g_0$; в — $t = 15$ мс, $g_v^{(A)} = 0$; г — $t = 18,7$ мс, $g_v^{(A)} = g_0$; д — $t = 30$ мс, $g_v^{(A)} = 3g_0$



періоду вібрації (час відліковується від початку періоду). За відсутності вібраційного прискорення (рис. 8, *a*) картина ліній струму якісно така ж як на рис 4, *б*. При від'ємному сумарному прискоренні (рис. 8, *б*) в нижній частині розплаву утворюється вторинний вихор, який за інерцією продовжує існувати і при додатних величинах сумарного прискорення (рис. 8, *в, з*). Утворення вторинного вихору зумовлено релей-тейлорівською нестійкістю руху рідкої фази. Наведені результати обчислювальних експериментів можна інтерпретувати таким чином, що інтенсивні вібрація з коефіцієнтом вібраційного підсилення більшим за одиницю може негативно позначитися на фізичній і хімічній однорідності кристалу, що вирощується.

Обговорення результатів досліджень. У даній роботі співставлені гідродинамічні потоки при вирощуванні кристалів двома методами, які в даній час розглядаються як найбільш перспективні для орбітальних експериментів — метод Бріджмена і метод плаваючої зони. Порівняльний аналіз отриманих розрахункових даних показує, що принципові відмінності цих методів у формуванні потоків розплаву як за наявності вібраційних впливів, так і без них пов'язані з різною тепловою обстановкою в рідкій фазі. У схемі Бріджмена температура розплаву монотонно зростає вздовж аксіальної координати від температури кристалізації до температури нагрівача, зберігаючи незмінним знак температурного градієнта. Внаслідок цього при вирощуванні кристалу за схемою Бріджмена в умовах невагомості виникає нестійкість течії розплаву по типу релей-тейлорівської. Аналогічний, хоча і менш виражений ефект проявляється також і в земних умовах вирощування, якщо накласти вібрацію з $k > 1$ (рис. 8).

В методі зонної плавки тепловий центр розташований симетрично по відношенню до фронтів плавлення і кристалізації, які обмежують рідку ванну. Завдяки цьому за наявності вібраційних збурень циркуляція розплаву зберігає стійкість, а вплив вібрації на течію розплаву в умовах невагомості обмежується періодичною зміною напрямку обертання вихору. Таким чином, метод плаваючої зони є менш чутливим до вібраційних збурень.

Вкажемо ще на одну особливість дії вібрації на течію рідкої фази при вирощуванні кристалів із розплаву. В земних умовах вирощування сумарне прискорення $g(t)$ як функція часу є асиметричним відносно нуля, а середнє за один період вібрації сумарне прискорення співпадає із g_0 . Тому вплив вібраційних прискорень на циркуляцію розплаву є обмеженим навіть тоді, коли $k > 1$. В умовах

невагомості $g_0 = 0$, тому в схемі Бріджмена дія вібраційних прискорень неминуче призводить до релей-тейлорівської нестійкості руху рідкої фази при невисоких частотах вібрації. Навпаки, при високій частоті вібрації, за якої $\tau_g \gg \tau$, через інерцію гідродинамічних процесів рідка фаза не встигає реагувати на вібраційні збурення і течія розплаву стає близькою до тієї, яка має місце за відсутності вібрації (рис. 4). У цьому випадку рух розплаву при вирощуванні кристалу за схемою Бріджмена в умовах невагомості взагалі стає відсутнім, оскільки різнополярні вібраційні прискорення усереднюються до нуля. Важливою характеристикою, відповідальною за вібраційну чутливість методів вирощування кристалів із розплаву, є постійна за часом гідродинамічного процесу. Величина цього параметру залежить від фізичних властивостей розплаву і в першу чергу — від в'язкості, а також від лінійних розмірів рідкої фази і її теплового стану. Таким чином можна стверджувати, що чим менша постійна за часом гідродинамічного процесу, тим більш чутливою до вібраційних збурень стає гідродинаміка розплаву.

Розглянуті випадки накладання вібрації показують принципову можливість застосування вібрації для придушення нерегулярності потоків поблизу фронту кристалізації. Такого роду потоки впливають не тільки на макроскопічний розподіл домішок, а й на мікросегрегаційну структуру. Відомо, що умисне втручання в розподіл домішок перед фронтом кристалізації є ефективним засобом управління структурою і структурно-чутливими властивостями кристалічного матеріалу [13]. Наступні кроки в цьому напрямку повинні враховувати варіативність напрямку вектора мікротяжіння, тривимірне моделювання та співставлення з реальною картиною твердіння на прозорих моделях.

Висновки

1. При аналізі чутливості гідродинамічних процесів в рідкій фазі до вібрації слід окремо розглядати два характерних випадки параметрів вібрації, при яких: сумарне прискорення (фонове + вібраційне) є знакопостійним; сумарне прискорення змінює знак протягом одного періоду вібрації. В останньому випадку можливе виникнення нестійкості течії розплаву по типу релей-тейлорівської, що є ймовірною причиною негативних результатів космічних експериментів з вирощування кристалів за схемою Бріджмена в умовах мікрогравітації.

2. Метод зонної плавки є менш чутливим до вібраційних збурень у порівнянні зі схемою Брідж-



жмена, що обумовлено аксіальною симетрією температурного поля розплаву при формуванні кристалу методом плаваючої зони.

3. При вирощуванні кристалів методом Бріджмена поблизу фронту кристалізації можливо утворення нестійких вторинних вихорів, які негативно впливають на фізичну і хімічну однорідність кристалічного матеріалу. В земних умовах вирощування примусова вібрація з коефіцієнтом вібраційного підсилення меншим за одиницю може слугувати засобом придушення вторинних вихорів.

1. *Плавление, кристаллизация и фазообразование в невесомости* / Л.И. Иванов, В.С. Земсков, В.Н. Кубасов и др. — М.: Наука, 1979. — 256 с.
2. *Земсков В.С., Раухман М.Р., Шалимов В.П.* Итоги экспериментов ИМЕТ РАН по выращиванию монокристаллов в условиях полетов космических аппаратов // Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН — 75 лет: Сб. науч. тр. под ред. акад. К.А. Солнцева. — М.: Интерконтакт Наука, 2013. — С. 383–407.
3. *Получение совершенных материалов в космосе* / Б.Е. Патон, Е.А. Аснис, С.П. Заболотин и др. // Космічна наука і технологія. — 2002. — 8, № 5/6. — С. 15–18.
4. *The influence of vibration on hydrodynamics and heat-mass transfer during crystal growth* / A. Fedyushkin, N. Bourago, V. Polezhaev, E. Zharikov // J. of Crystal Growth. — 2005. — 275. — P. 1557–1563.
5. *Подготовка космического эксперимента по выращиванию кристаллов методом направленной кристаллизации в условиях вибрационного воздействия на российском*

- сегменте международной космической станции / Е.В. Жариков, И.Х. Аветисов, А.В. Скоренко и др. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. — 2001. — № 9. — С. 56–62.
6. *Reversing radial segregation and suppressing morphological instability during Bridgman crystal growth by angular vibration* / W.C. Yu, Z.B. Chen, W.T. Hsu et al. // J. of Crystal Growth. — 2004. — 271. — P. 474–480.
 7. *Fedoseyev A.I., Alexander J.D.* Investigation of vibrational control of convective flows in Bridgeman melt growth configurations // Ibid. — 2000. — 211. — P. 34–42.
 8. *Исследование распределенных характеристик электронного пучка, формируемого кольцевым катодом при электронно-лучевой бестигельной зонной плавке* / В.Ф. Демченко, Е.А. Аснис, А.Б. Лесной и др. // Современ. электрометаллургия. — 2007. — № 3. — С. 20–23.
 9. *Ляшко И.И., Демченко В.Ф., Вакуленко С.А.* Вариант метода расщепления уравнений динамики вязкой несжимаемой жидкости на лагранжево-эйлеровых сетках // Доклады АН УССР, серия А. — 1981. — № 7. — С. 43–47.
 10. *Демченко В.Ф., Лесной А.Б.* Лагранжево-эйлеровый метод численного решения многомерных задач конвективной диффузии // Доповіді НАНУ. — 2000. — № 11. — С. 71–75.
 11. *Chopra M.A., Glicksman M.E., Singh N.B.* Dendritic solidification of Binary alloys // Met. Trans. A. — 1988. — № 19. — P. 3087.
 12. *Lee J.T.C., Brown R.A.* Experimental study of the planar to cellular transitions during thin — film directional solidification // Physical Review B. — 1993. — 47, № 9. — P. 4937–4952.
 13. *Федоров О.П.* Процессы роста кристаллов: кинетика, формообразование, неоднородности. — Киев: Наук. думка, 2010. — 207 с.

A mathematical model of thermal and hydrodynamic processes at growing crystals by the method of crucibleless electron beam melting and by Bridgeman process was proposed. Silicon (floating zone method) and transparent substance — succinonytryl (Bridgeman process) are considered as preparations for crystal formation. The mathematical model is based on the total system of equations of motion of a viscous incompressible liquid and equation of convective-conductive energy transfer in axisymmetric approximation. The model allows for the following force factors that cause the melt motion: Archimedean lifting force; Marangoni thermocapillary force; vibration of process equipment elements. Mathematical modeling method was used for comparative analysis of hydrodynamic and thermal processes at crystal growth by Bridgeman process and by zone melting method. Peculiarities of the melt hydrodynamic condition at crystal forming on the ground and under microgravity conditions, both in the absence of vibrational disturbances and at superposition of axial vibration by the harmonic law, were studied. It is shown that the technological processes of crystal growing from the melt are especially sensitive to vibrational disturbances in the case, if the total acceleration (background and vibration) changes its sign within one period of vibration. In such a case Raleigh–Taylor instability of liquid phase motion is possible, which inevitably arises at crystal growing by Bridgeman process at zero gravity. Low intensity vibration can be the tool for inhibition of secondary vortices near the solidification front at crystal growing on the ground, both by zone melting, and by Bridgeman process. Calculation results are compared with some experimental data. 13 References, 1 Table, 8 Figures.

Key words: *crystal growing; zone melting; Bridgeman process; hydrodynamics; microgravity; mathematical modeling*

Надійшла 24.03.2015