

МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕПЛООБМЕНА В РАСПЛАВЕ ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ МОНОКРИСТАЛЛОВ МЕТОДОМ СТОКБАРГЕРА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ АСРТ*

В. Э. Дистанов, А. Г. Кирдяшкин

Институт минералогии и петрографии СО РАН, 630090 Новосибирск

На модельных экспериментах показано, что определяющим для выращивания кристаллов методом Стокбаргера в условиях вынужденной конвекции и регулирующим процесс кристаллизации является слой расплава, заключенный между фронтом кристаллизации и нагревателем диафрагмы ростовой печи. Свободный объем расплава не влияет на его гидродинамическую и тепловую структуры. Оценены оптимальные временные значения выдержки при постоянных максимальной и минимальной скоростях модулированного вращения ростовой ампулы.

При исследовании влияния температурного поля в ростовой печи на оптическое качество монокристаллов, выращенных методом Стокбаргера, отмечалось, что определяющими факторами являются положение фронта кристаллизации в ростовой печи и возмущение теплового поля вблизи него [1]. Очевидно, что рассмотрение влияния какого-либо одного параметра возможно лишь при постоянстве других контролируемых параметров, определяющих условия кристаллизации. Как в классическом методе Стокбаргера (рис. 1), температурное поле в ростовой печи формировалось тремя нагревателями: верхним, нижним и срединным (нагревателем диафрагмы).

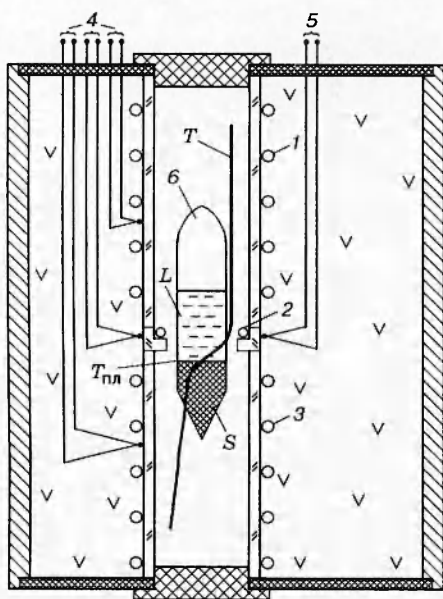


Рис. 1. Схема ростовой печи и температурного распределения в ней:

1 — верхний нагреватель; 2 — кольцевой нагреватель диафрагмы; 3 — нижний нагреватель; 4 — регулирующие термопары; 5 — контрольная термопара; 6 — ростовая ампула

Исследованы три положения фронта кристаллизации относительно кольцевого нагревателя диафрагмы и влияние его на оптическое качество монокристаллов прустита

* АСРТ — Accelerated Crucible Rotation Technique (техника ускоренного вращения ростовой ампулы).

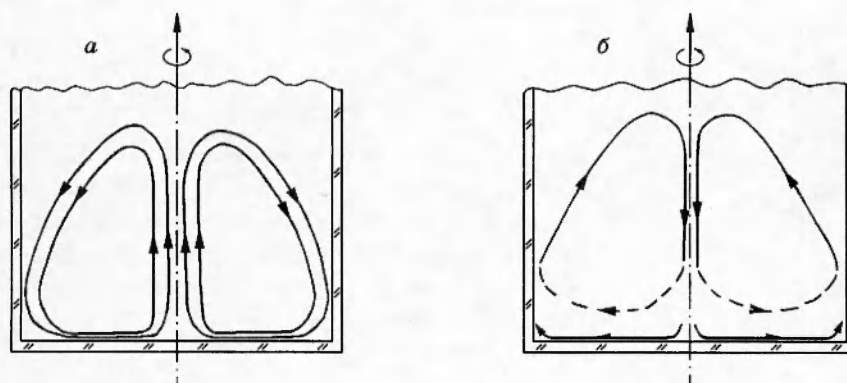


Рис. 2. Направление линий тока жидкости в ампуле у термостатированной подложки при замедленном (*a*) и ускоренном (*б*) вращении ампулы

(Ag_3AsS_3 — нелинейно-оптический материал с $T_{\text{пл}} = 485^\circ\text{C}$). Показано, что монокристаллы высокого оптического качества получены только в случае нахождения фронта кристаллизации ниже уровня диафрагмы, хотя ранее [2] отмечалась невозможность получения качественных монокристаллов в подобных условиях. Наряду с этим наибольший положительный эффект при получении крупных монокристаллов для оптоэлектроники методом Стокбаргера имеет место при использовании принудительного перемешивания расплава методом модулированного вращения ростового контейнера [3]. Перемешивание обуславливается наличием в расплаве интенсивных потоков, которые при замедлении скорости вращения ампулы направлены у фронта кристаллизации радиально от образующей цилиндра к оси вращения, а при ускорении — от оси к образующей цилиндра [4] (рис. 2, *a*, *б*).

В экспериментах по физическому моделированию гидродинамики и тепломассообмена в расплаве при выращивании монокристаллов методом АСРТ рассматривался случай, когда толщина слоя расплава была равна или незначительно превышала расстояние от фронта кристаллизации до кольцевого нагревателя диафрагмы [5]. Поскольку в процессе реального роста кристаллов методом Стокбаргера (особенно на начальном его этапе) всегда существует слой расплава, расположенный выше уровня срединного нагревателя, важно знать его влияние на общую гидродинамическую и тепловую структуру расплава. В реальных условиях этот слой имеет постоянную температуру по оси ростовой печи уже на незначительном расстоянии выше диафрагмы.

В данной работе моделируется тепловая структура в слое расплава высотой, существенно превышающей расстояние от нижнего уровня срединного нагревателя диафрагмы до фронта кристаллизации. Проведены модельные эксперименты, рассмотрена тепловая структура жидкости (в качестве модельной рабочей жидкости использовался 96 %-ный этиловый спирт) для неподвижной и модулированно-вращающейся ампулы при вертикальной оси вращения. Для измерения температурного поля в объеме расплава был создан специальный фторопластовый вкладыш с намотанным на него спиралевидным нагревателем 4 (рис. 3) из константановой проволоки диаметром 0,15 мм (сопротивление $R = 70$ Ом). Вкладыш помещался в цилиндрическую ампулу 1 из оптического кварца диаметром 44,5 мм. Над нагревателем находился свободный объем этанола А, соизмеримый по высоте с рабочим объемом H_1 этанола. Высота его столба изменялась поднятием и опусканием фторопластового затвора 3 с вмонтированными в него центральной прямой 5 и Г-образной 6 дифференциальными нихромконстантановыми ($\phi = 0,05$ мм) термопарами, помещенными в отверстие во фторопластовом цилиндрическом затворе. Свободная поверхность расплава находилась на уровне 5 мм ниже горизонтальной поверхности затвора 7.

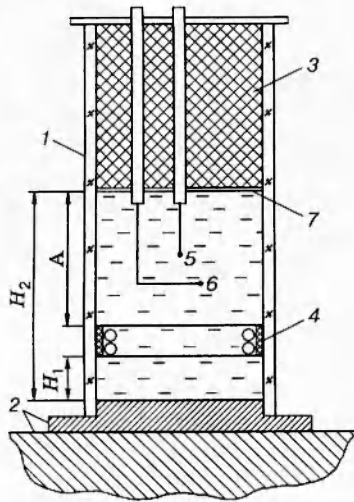


Рис. 3. Схема модулированно-вращающейся ампулы:

1 — цилиндрическая ампула; 2 — термостатированная медная подложка; 3 — фторопластовый цилиндрический затвор; 4 — теплообменник; 5 — центральная термопара; 6 — Г-образная термопара; 7 — поверхность жидкого слоя; H_1 — высота рабочего объема жидкости; H_2 — высота всего столба жидкости; A — высота свободного объема жидкости

Холодные спаи термопар помещались на термостатированном медном основании кварцевой ампулы 2, расположенном на вращающемся столе. Отсчет производился от температуры охлаждаемой поверхности, моделирующей растущую грань кристалла. Измеряемая температура $T_{отн}$ равна разности значений температуры в объеме жидкости и температуры охлаждаемого дна кварцевой ампулы ($T_{отн} = T_{расп} - T_{д}$). Мощность нагревателя 3 Вт, температура подложки $24,5\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Измерение координат положения термопар осуществлялось катетометром В-630 (помещен на координатный стол), позволяющим измерять перемещение в горизонтальном направлении с точностью 0,01 мм. Синхронные измерения мгновенных значений ЭДС термопар осуществлялись измерительным комплексом, описанным в [5]. Отличие заключается в том, что дополнительно (синхронно и в том же временном масштабе) велась запись изменения числа оборотов вращающейся вокруг вертикальной оси ампулы с помощью трехканального самопишущего потенциометра Н-3030-3 с электронного тахометра модели ТЭСА.

При моделировании выращивания кристаллов методом Стокбаргера кольцевой нагреватель в модельной ампуле, так же как кольцевой нагреватель диафрагмы ростовой печи 2 (см. рис. 1), создает температурный перепад между термостатированной подложкой ампулы (фронт кристаллизации) и нагревателем, одновременно обеспечивает постоянную температуру свободного объема этанола, как и верхний нагреватель ростовой печи 1 (см. рис. 1); функция термостатированной подложки ампулы, моделирующей плоский фронт кристаллизации, аналогична функции нижнего нагревателя ростовой печи 3 (см. рис. 1).

Первоначально проводились измерения значений температур по оси неподвижной ампулы (рис. 4, кривая 1). Зафиксировано, что выше нагревателя (во всем свободном объеме жидкости) температура постоянная. В рабочем же объеме жидкости (ниже нагревателя) температура изменялась по экспоненциальному закону аналогично температурному распределению, полученному в экспериментах с ампулами меньших диаметров и без свободного объема жидкости [5]. Полученное температурное распределение идентично используемому при росте монокристаллов из расплава методом Стокбаргера. Закономерность изменения средней температуры по высоте ядра течения во всем объеме жидкости в модулированно-вращающейся ампуле представлена на рис. 4 (кривая 2).

Исследования проводились при законе модулированного вращения трапецидальной формы (рис. 5, кривая 11). Время ускорения было равно времени замедления и составля-

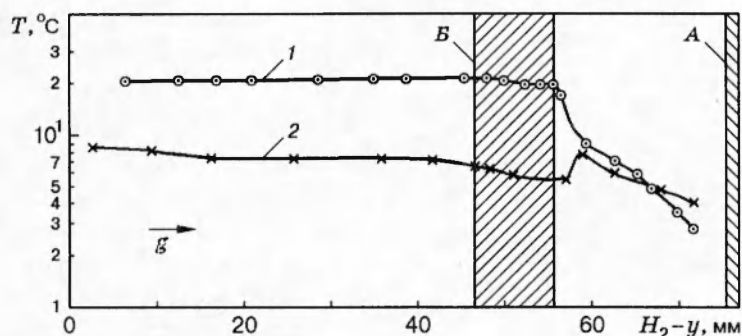


Рис. 4. Распределение температур по высоте слоя жидкости ($H_1 = 19,02$ мм, $H_2 = 75,18$ мм): 1 — температура при $y = \text{const}$ (без вращения); 2 — осредненная по времени температура в сечении $y = \text{const}$ (при модулированном вращении); А — термостатированная подложка; Б — нагреватель; g — ускорение силы тяжести

до 20 с. Время выдержки при постоянной максимальной и минимальной скорости было одинаково ($\tau_1 = \tau_2 = 10$ с). Время инерционной задержки τ_3 изменения температуры относительно изменения скорости вращения ротора увеличивалось по мере удаления от вращающегося термостатированного основания (с увеличением y). По высоте свободного объема жидкости над нагревателем аналогично случаю неподвижной ампулы наблюдалась постоянная температура с дальнейшим переходом в рабочем объеме жидкости (см. рис. 4, кривая 2) по экспоненциальному закону изменения температуры. В объеме жидкости, ограниченном по периметру цилиндрическим нагревателем, имело место локальное снижение средней температуры на $2,2$ °С из-за вихревых течений в районе кольцевого нагревателя.

Получены разные актуальные значения температур во времени по оси ампулы в модулированно-вращающемся контейнере по всей высоте жидкости (ниже, внутри и выше кольцевого нагревателя) в зависимости от вертикальной координаты y точки измерения температуры (на плоском охлаждаемом дне ампулы $y = 0$). Общая высота столба жидкости $H_2 = 75,18$ мм, высота рабочего слоя жидкости от нижнего торца нагревателя до термостатированного дна ампулы $H_1 = 19,02$ мм, высота нагревательного элемента $8,85$ мм, высота свободного объема жидкости над нагревателем $A = 48,71$ мм. Возникающие из-за модулированного вращения периодические изменения актуальных значений температур (подобные изменениям скорости вращения ампулы), представленные на рис. 5, уменьшаются по амплитуде по мере удаления от кольцевого нагревателя вверх. Они полностью исчезают на высоте $11,2$ мм выше верхнего уровня нагревателя, что соответствует координате y выхода средней температуры на стационарное значение (см. рис. 4, кривая 2). Это уровень влияния вихревого течения у термостатированного основания ампулы, образующегося при модулированном ее вращении. Максимальная амплитуда температурных колебаний зафиксирована на высоте $2,28$ мм ниже нагревателя и составляла $9,29$ °С. У термостатированного дна ампулы, моделирующего плоский фронт кристаллизации, амплитуда температурных колебаний составляла $7,24$ °С.

С целью определения оптимальных временных параметров закона модулирования скорости вращения при фиксированных значениях максимальной ($n_{\text{max}} = 130$ об/мин) и минимальной ($n_{\text{min}} = 20$ об/мин) скоростей проведены исследования инерционности системы и времен затухания вихревых течений в расплаве после выхода на постоянные максимальные и минимальные скорости. Результаты этих исследований позволяют оптимально выбрать время существования «полочек», где скорость вращения постоянна. Для этого

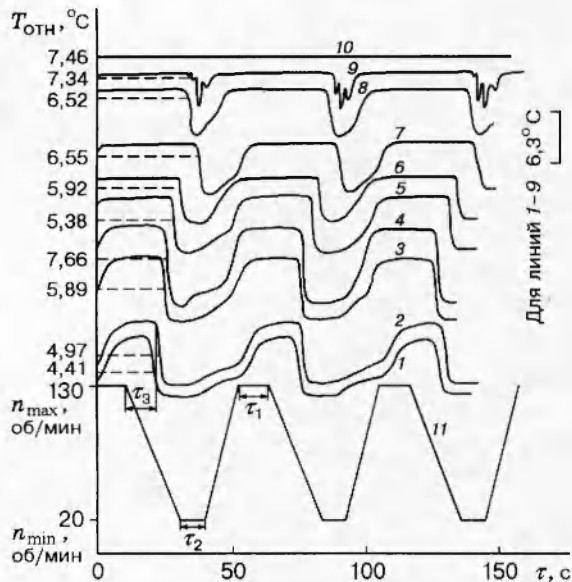


Рис. 5. Зависимость от времени мгновенных значений температуры, измеренных по оси ампулы ($H_1 = 19,02$ мм, $H_2 = 75,18$ мм, на термостатированной подложке $y = 0$, координаты нагревателя $19,02 < y < 27,87$ мм):

1 соответствует $y = 3,67$ мм; 2 — 7,23 мм; 3 — 12,71 мм; 4 — 16,2 мм; 5 — 18,27 мм; 6 — 24,22 мм; 7 — 27,06 мм; 8 — 29,06 мм; 9 — 33,46 мм; 10 — 39,16 мм; 11 — закон модулированного вращения ампулы, где $n_{\max} = 130$ об/мин — максимальная скорость вращения; $n_{\min} = 20$ об/мин; τ_1 и τ_2 — время выдержки ампулы при максимальной и минимальной скоростях вращения соответственно; τ_3 — время отставания изменения температуры относительно соответствующего ей изменения скорости вращения

первоначально устанавливался режим модулированного вращения, при котором периодические изменения температуры имели постоянные амплитудные значения. После достижения минимального значения скорости вращения она стабилизировалась ($n_{\min} = \text{const}$), одновременно фиксировалось изменение температуры во времени. Время $\tau_{\max,2}$, в течение которого температура достигала своего постоянного значения, находилось из графиков зависимости температуры от времени по точке, где фиксировалось отклонение от экспоненциальной зависимости (рис. 6) [5]. Точно так же определялось время $\tau_{\max,1}$ и при стабилизации скорости вращения при ее максимальном значении. Температура измерялась по вертикальной оси ампулы ($r = 0$). Эксперименты проводились при высотах рабочего слоя жидкости $H_1 = 40,5$ и $19,2$ мм.

Характер зависимостей $\tau_{\max,1}$ (при $n_{\max} = \text{const}$) и $\tau_{\max,2}$ (при $n_{\min} = \text{const}$) от расстояния до термостатированного дна ампулы y аналогичен таковому для ампул диаметром 29 мм [5]. Для случая $n_{\min} = \text{const}$ (рис. 7, а) при различных высотах H_1 имеется пик максимального значения $\tau_{\max,2}$ при определенном значении $y/H_1 = \text{const}$. Так, $\tau_{\max,2} = 145$ с при $H_1 = 19,2$ мм, $y/H_1 = 0,41$ и $\tau_{\max,2} = 165$ с при $H_1 = 40,5$ мм, $y/H_1 = 0,48$. Среднее значение $\tau_{\max,2}$ имеет тот же порядок, что и для ампулы диаметром 29 мм: $\tau_{\max,2} = 80$ с при $H_1 = 40,5$ мм, $\tau_{\max,2} = 75$ с при $H_1 = 19,2$ мм [5]. В случае $n_{\max} = \text{const}$ (рис. 7, б) среднее значение $\tau_{\max,1}$ составляет 130 с, что почти в 2 раза превышает среднее значение $\tau_{\max,1}$ для ампул диаметром 29 мм. Здесь сказывается увеличение инерционности системы для ампул больших диаметров без изменения закона модулирования скорости их вращения. Это необходимо учитывать при подборе и изменении режима модулированного вращения при переходе с одного диаметра ампулы на другой при соблюдении условия $Ta_1 = Ta_2$ (Ta — число Тэйлора [4]):

$$Ta = (\omega_{\max}^2 - \omega_0^2)r^4/\nu^2.$$

Здесь ω_{\max} , ω_0 — максимальная и средняя угловые скорости вращения ампулы; r — внутренний радиус ампулы; ν — кинематическая вязкость. В модельных экспериментах значение Ta изменялось от $6,3 \cdot 10^6$ (при $r = 1,45$ см) до $3,7 \cdot 10^7$ (при $r = 2,25$ см). Оптимальные значения длительности вращения ампулы с постоянной скоростью вращения (минимальной и максимальной) должны быть меньше характерных времен инерционности системы: $\tau_1 < \tau_{\max,1}$, $\tau_2 < \tau_{\max,2}$.

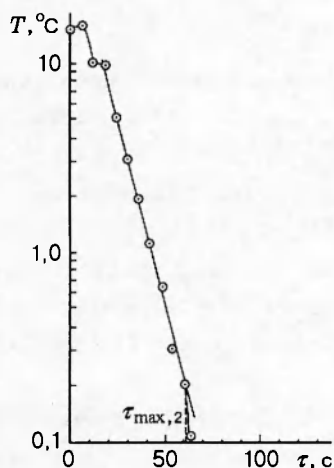


Рис. 6

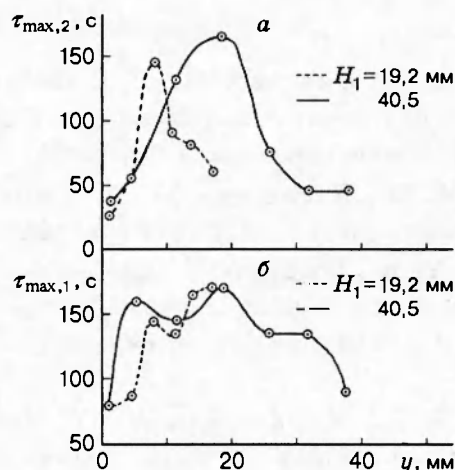


Рис. 7

Рис. 6. Зависимость температуры T от времени τ при стабилизированной скорости вращения контейнера ($n_{\min} = 20$ об/мин = const, $\bar{H}_1 = 19,2$ мм, $y = 16,95$ мм)

Рис. 7. Зависимость времени стабилизации температуры $\tau_{\max,2}$ от вертикальной координаты y при $n_{\min} = 20$ об/мин = const (а), $\tau_{\max,1}$ при $n_{\max} = 130$ об/мин = const (б)

В заключение сделаем следующие выводы.

1. Определяющей при росте монокристаллов методом Стокбаргера с использованием АСРТ является область расплава, заключенная между фронтом кристаллизации и кольцевым нагревателем диафрагмы (рабочий объем расплава), когда точка, соответствующая $T_{\text{пл}}$, находится ниже нагревателя диафрагмы. Эта область характеризуется наличием интенсивных периодических течений, обуславливающих периодические изменения актуальных значений температур, подобные изменениям скорости вращения ампулы. Как показано в [5], уменьшение высоты рабочего объема расплава резко увеличивает амплитуды температурных колебаний в расплаве у фронта кристаллизации, что приводит к возникновению термоупругих напряжений в растущем кристалле. Увеличение высоты этой зоны ведет к необходимости, как правило, существенного перегрева расплава, что также обуславливает большие температурные градиенты в расплаве и растущем кристалле, отрицательно сказывающиеся на их структурном совершенстве. Это накладывает ограничения на высоту рабочего объема расплава, а значит, и на положение точки плавления исследуемого вещества относительно срединного нагревателя при росте монокристаллов методом Стокбаргера. Оптимальная высота рабочего объема расплава от 10 до 30 мм.

2. Высота свободного объема расплава (выше нагревателя диафрагмы) не влияет на гидродинамическую и тепловую структуру в рабочем объеме расплава. Периодические колебания температур в расплаве, обусловленные модулированным вращением ампулы, полностью исчезают в свободном объеме расплава при выходе средней температуры (замеренной по вертикальной оси ампулы) на стационарное значение.

3. Оптимальные временные значения выдержки при постоянных максимальной и минимальной скоростях вращения лежат в интервале от времени инерционной задержки τ_3 до времени стабилизации температуры после выхода на постоянную скорость вращения $\tau_{\max,1}$ и $\tau_{\max,2}$.

ЛИТЕРАТУРА

1. Годовиков А. А., Дистанов В. Э., Лобанов С. И. и др. Условия выращивания монокристаллов прустита повышенного оптического качества // Синтез и выращивание оптических кристаллов и ювелирных камней. Новосибирск: ИГиГ СО АН СССР, 1981. С. 4–11.
2. Степанов И. В., Васильева М. А. Управление тепловым фактором при выращивании оптических монокристаллов // Рост кристаллов. М.: Изд-во АН СССР, 1961. Т. 3. С. 223–238.
3. Godovikov A. A., Distanov V. E., Nenachev B. G. The application of the forced stirring of the melt during the high optical quality single crystals growth by the Bridgman — Stockbarger method // Proc. Eur. Meeting on Crystal Growth'82 Materials for Electronics, Prague, 1982. P. 305–306.
4. Дистанов В. Э., Кирдяшкин А. Г., Ненашев Б. Г. Применение принудительного перемешивания расплава для выращивания монокристаллов методом Бриджмена — Стокбаргера // Материалы по генетической и экспериментальной минералогии. Рост кристаллов. Новосибирск: Наука, 1988. С. 21–42.
5. Kirdyashkin A. G., Distanov V. E. Hydrodynamics and heat transfer in a vertical cylinder exposed to periodically varying centrifugal forces (accelerated crucible — rotation technique) // Int. J. Heat and Mass Transfer. 1990. V. 33, N 7. P. 1397–1415.

Поступила в редакцию 23/V 1996 г.
