

УДК 532.5:532:78

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ОПТИМАЛЬНЫХ УСЛОВИЙ ТЕПЛОМАССОБМЕНА ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ КРУПНЫХ КРИСТАЛЛОВ МЕТОДОМ ГОРИЗОНТАЛЬНОЙ НАПРАВЛЕННОЙ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ

В. В. Гуров, А. Г. Кирдяшкин

Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН,  
630090 Новосибирск, Россия  
E-mails: vladvg@igm.nsc.ru, agk@igm.nsc.ru

Экспериментально исследованы условия теплообмена при горизонтальной направленной кристаллизации тугоплавких оксидных соединений в случае нагрева снизу задней части контейнера. Установлено, что такой нагрев приводит к существенному изменению характера массообмена в центральной области слоя жидкости. В результате формируется устойчивая структура, которая обеспечивает поступление жидкости из задней части контейнера к фронту кристаллизации, массообмен в приповерхностном и придонном вихрях, а также более эффективное перемешивание расплава.

**Ключевые слова:** эксперимент, теплообмен, кристаллизация из расплава, горизонтальная направленная кристаллизация.

DOI: 10.15372/PMTF20160408

**Введение.** На структуру кристаллов, выращиваемых из расплава, имеющего сложный состав, существенное влияние оказывает теплообмен. Для выращивания монокристаллов тугоплавких оксидных соединений, таких как сапфиры, гранаты, хризоберилл, применяется метод горизонтальной направленной кристаллизации (ГНК), описанный в работах [1, 2].

При использовании метода ГНК перемешивание расплава происходит за счет наличия свободно-конвективных потоков. Проведенные ранее исследования показали, что при увеличении толщины слоя расплава в контейнере формируются потоки с устойчивой гидродинамической структурой на периферии и обширной застойной зоной в центре. Это существенно затрудняет получение высококачественного материала [3, 4].

На рис. 1 показаны пластины, вырезанные поперек передней части кристалла хризоберилла ( $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ ) с добавкой окиси хрома. Форма сечения в этой зоне отличается от прямоугольной, характерной для основной части кристалла, что может повлиять на пространственную конфигурацию потоков жидкости. Тем не менее, как показывает анализ структуры выращенных кристаллов, общие закономерности расположения застойной зоны

---

Работа выполнена в рамках программы фундаментальных научных исследований “Экспериментальное и теоретическое моделирование тепловой и гидродинамической структуры термохимического плюма и влияния плюмов на состав и строение литосферы” (код проекта VIII.66.1.2).

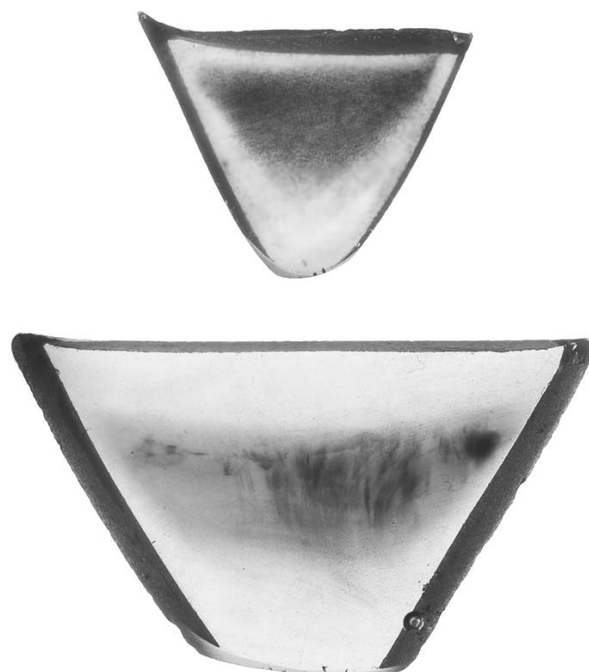


Рис. 1. Пластины, вырезанные поперек выращенного кристалла хризоберилла, легированного оксидом хрома:  
темные участки — области с повышенной концентрацией хрома

сохраняются. В центре отчетливо видна обогащенная легирующей примесью область, форма и расположение которой согласуются с полученными в экспериментах данными о структуре потоков жидкости, приведенными в работе [5].

Нижний фрагмент кристалла, представленный на рис. 1, образовался приблизительно на 24 ч позднее верхнего фрагмента, однако стабильность области, обогащенной хромом, свидетельствует о почти полном отсутствии конвективного массообмена в центральной зоне.

В настоящей работе экспериментально исследована возможность управления тепло-массообменом в расплаве при выращивании монокристаллов методом ГНК.

**Постановка задачи.** При выращивании кристаллов методом ГНК платформа, на которой находится перемещаемый вдоль нагревателя контейнер, экранирует подвод тепла к его дну, что оказывает влияние на распределение температуры в расплаве. Высокие температуры, требования к атмосфере в рабочей камере, необходимость подвода тока большой силы к нагревателю существенно ограничивают возможность изменения этого распределения за счет использования дополнительных нагревателей. Поэтому был рассмотрен вариант изменения условий теплообмена в расплаве путем подвода теплового излучения рабочего нагревателя к дну задней части контейнера через щель в платформе.

В соответствии с теорией подобия вычислены значения чисел Прандтля и Грасгофа для расплава хризоберилла [6]. Поскольку в литературе отсутствуют данные о вязкости и температуропроводности расплава  $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ , в расчетах использовались значения, известные для расплава  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , являющегося основным (массовая доля 80 %) компонентом хризоберилла. Необходимые теплофизические величины взяты из работы [7]. С учетом указанных допущений для реальных условий процесса кристаллизации хризоберилла методом ГНК получены следующие значения безразмерных параметров подобия:  $\text{Pr} = 16,67$ ,  $\text{Gr} = 1,74 \cdot 10^6$ . Поведение частиц молибдена на поверхности расплава в процессе кристал-

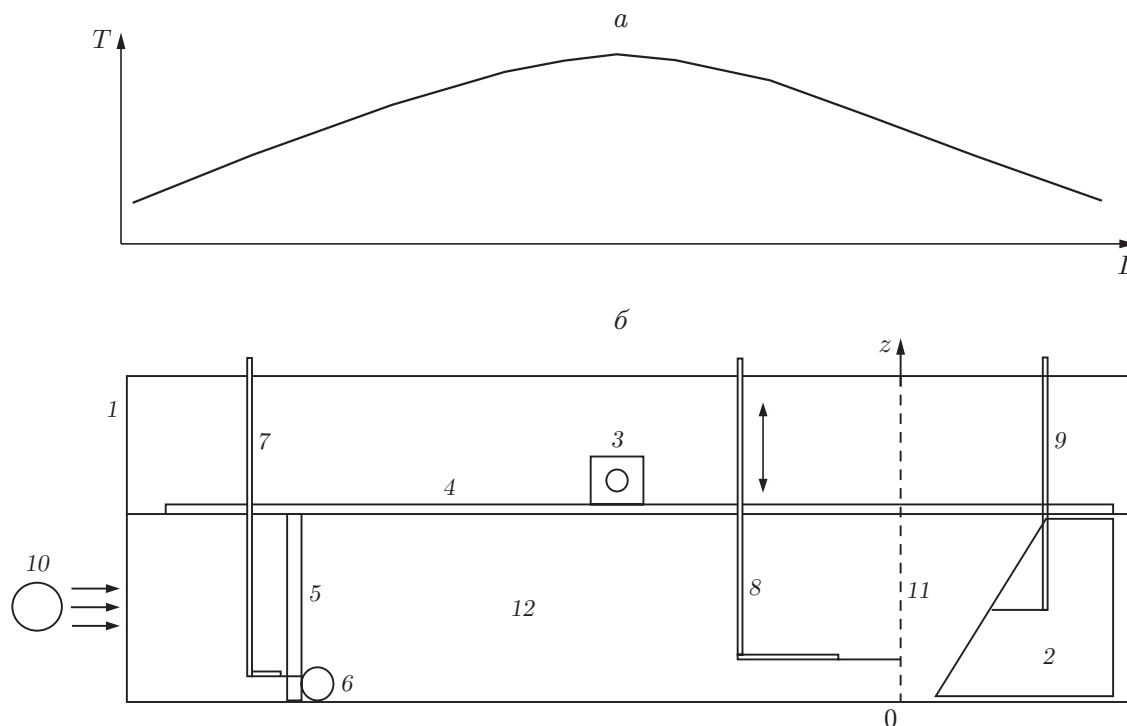


Рис. 2. Схема модельного эксперимента:

*a* — распределение температуры вдоль горизонтальной оси камеры установки, в которой осуществляется ГНК, *b* — схема модельной экспериментальной установки (1 — ювета, 2 — изотермический блок, 3 — нагреватель, 4 — металлическая пластина, 5 — перегородка из оргстекла, 6 — дополнительный нагреватель, 7–9 — термопары, 10 — световой “нож” для освещения частиц алюминиевой пудры, визуализирующих течения, 11 — сечение, в котором измерялись температура и скорость потока, 12 — жидкость)

лизации свидетельствует об отсутствии в системе термокапиллярной конвекции, поэтому в модельных экспериментах она не учитывалась.

В качестве модельной жидкости использовался этиловый спирт ( $Pr = 14$ ,  $Gr = 7,43 \times 10^6$ ) с добавлением алюминиевой пудры для визуализации гидродинамических потоков.

**Методика проведения экспериментов и используемая аппаратура.** На рис. 2, *a* показано распределение температуры вдоль оси ростовой камеры установки “Сапфир-2М”, которое создается нагревательным элементом. В середине зоны находится точка, в которой горизонтальный градиент температуры меняет знак. Влияние нагревателя на поле температуры ограничено вследствие наличия платформы, на которой располагается контейнер с расплавом. Поэтому возникает вертикальный градиент температуры, который и определяет наклон фронта кристаллизации. Кроме того, поскольку платформа изготовлена из листа молибдена толщиной  $2 \div 3$  мм, имеющего большую теплопроводность, распределение температуры вблизи дна контейнера является более равномерным, чем на свободной поверхности расплава.

Указанные выше особенности поля температуры были учтены в конструкции нагревателя. Нагреватель представлял собой бифилярно навитый спиральный элемент из нихрома, герметично встроенный в отверстие в алюминиевом бруске размером  $15 \times 15 \times 100$  мм (рис. 2, *b*), который крепился в середине металлической пластины из титана толщиной 1 мм, передающей тепло при непосредственном контакте с жидкостью. Материал пластины и ее толщина были подобраны экспериментально, так чтобы распределение темпера-

Значения температуры элементов экспериментальной установки  
при различных значениях мощности тока, подводимого к дополнительному нагревателю

$P$ , Вт	$T_6$ , °С	$T_{ОН}$ , °С	$T_{ДН}$ , °С
0	16,9	47,0	18,2
1,1	16,9	51,5	21,3
4,4	17,2	52,5	28,4

туры вдоль нее было аналогично распределению, представленному на рис. 2,а. Один конец нагревательной пластины опирался на изотермический медный блок (см. рис. 2,б), через который прокачивалась вода заданной постоянной температуры и который моделировал фронт кристаллизации. Другой конец пластины лежал на перегородке из оргстекла, задающей длину исследуемого слоя жидкости (160 мм), что соответствует размерам реальных контейнеров. Ширина слоя жидкости (65 мм) была ограничена с помощью пластины из органического стекла. В нижней части задней стенки поперек кюветы размещался дополнительный нагреватель (см. рис. 2,б), представляющий собой медную трубку диаметром 6 мм и длиной 90 мм с герметично встроенным нихромовым нагревателем и контрольной нихром-константановой термопарой. Дополнительный нагреватель моделировал воздействие теплового излучения нагревателя на дно контейнера при наличии щели в платформе. Конструкция размещалась в кювете размером  $100 \times 100 \times 260$  мм из органического стекла толщиной 8 мм, заполненной модельной жидкостью — этиловым спиртом (см. рис. 2,б). В остальном методика экспериментов была аналогична описанной в работе [5].

Эксперименты проводились в трех режимах: при отключенном дополнительном нагревателе и при подаче на него электрического тока мощностью  $P = 1,1; 4,4$  Вт от стабилизированного источника постоянного тока. Значения температуры некоторых элементов экспериментальной установки в различных режимах приведены в таблице ( $T_6$  — температура изотермического блока,  $T_{ОН}$ ,  $T_{ДН}$  — температура основного и дополнительного нагревателей соответственно).

Температура и горизонтальная компонента скорости потоков в кювете измерялись на расстоянии 37 мм от зоны контакта верхнего нагревателя и изотермического блока. В ходе экспериментов размеры кюветы не менялись.

Скорости потоков определялись путем измерения длины траекторий движения микрочастиц алюминия в модельной жидкости за определенный период времени. Характер и интенсивность потоков фиксировались цифровой фотокамерой.

**Результаты исследований.** На рис. 3 показаны потоки жидкости при отключенном нижнем нагревателе и при подаче на него постоянного тока. В первом случае видно, что во всей кювете, за исключением приповерхностной и придонной зон, перед модельным фронтом кристаллизации образуется обширная область, в которой практически отсутствует движение жидкости (см. рис. 3,а). Наличие этой области препятствует гомогенизации расплава при локальной добавке легирующей примеси, что приводит к появлению дефектов (см. рис. 1). Появление в кювете дополнительного источника тепла вызывает существенное изменение характера массообмена (см. рис. 3,б).

Нагретая жидкость поднимается вверх, и, достигнув центральной области слоя, меняет направление. При этом образуется мощный горизонтальный поток, движущийся к фронту кристаллизации, на котором он раздваивается. Верхняя часть потока смешивается с потоком, образованным приповерхностным вихрем, а нижняя — с нисходящим потоком, движущимся вдоль фронта кристаллизации, и затем с придонным потоком. Поворот потока вблизи задней стенки контейнера наблюдается в области, где плотность жидкости, нагретой дополнительным нагревателем, становится равной плотности жидкости, нагретой

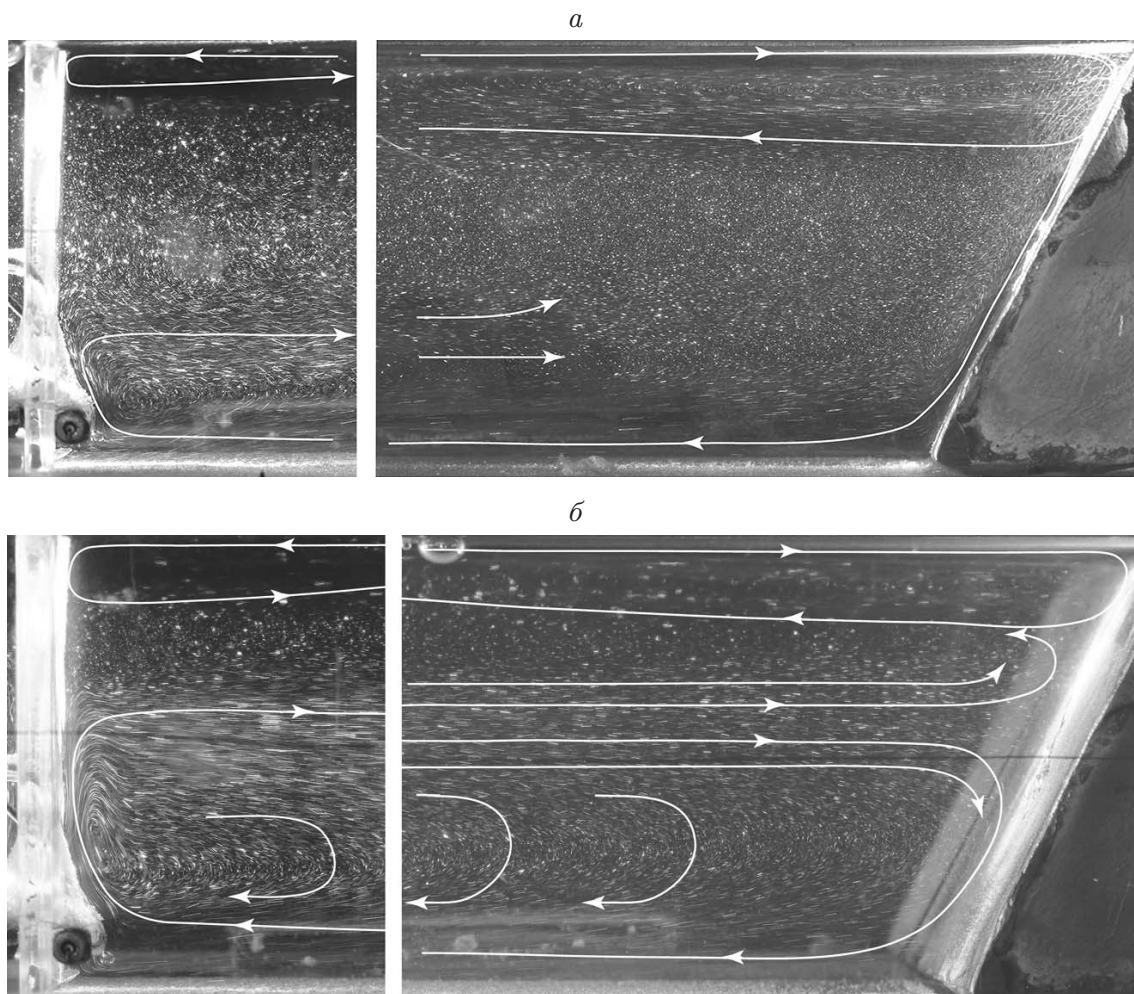


Рис. 3. Направления основных потоков жидкости вблизи задней стенки кюветы (слева) и изотермического блока (справа) (толщина слоя жидкости 45 мм): *a* — в случае, когда дополнительный нагреватель отключен; *б* — в случае, когда на дополнительный нагреватель подается постоянный ток мощностью  $P = 1,1$  Вт

верхним, более мощным источником тепла. При подаче на дополнительный нагреватель тока мощностью  $P = 4,4$  Вт горизонтальный поток жидкости приближается к верхней границе слоя, но на приповерхностную гидродинамическую структуру не оказывает влияния. Это свидетельствует о том, что в ходе экспериментов граничные условия, определяющие разность температур и вертикальный градиент, не нарушаются.

Вследствие наличия горизонтального градиента температуры скорость верхнего потока придонной гидродинамической структуры уменьшается по мере перемещения от дополнительного нагревателя к фронту кристаллизации. Поэтому часть жидкости опускается и возвращается к задней стенке (см. рис. 3,б).

Таким образом, дополнительный нагрев приводит к разрушению застойной области, причем существенное увеличение его мощности не влияет на характер течения и приводит к незначительному увеличению размеров центральной области течения и скорости потоков.

С использованием полученных в результате проведенных экспериментов данных построены профили температуры (рис. 4) и скорости  $u$  потоков жидкости (рис. 5).

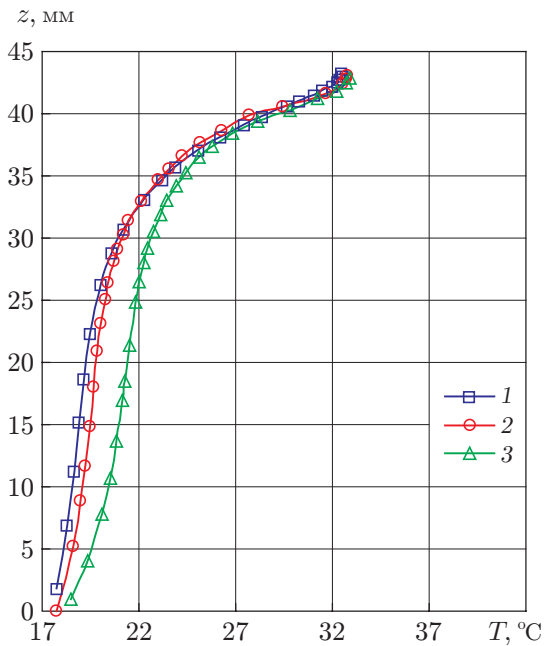


Рис. 4

Рис. 4. Профили температуры в кювете вблизи фронта кристаллизации при различных значениях мощности подводимого к дополнительному нагревателю электрического тока:

1 —  $P = 0$ , 2 —  $P = 1,1$  Вт, 3 —  $P = 4,4$  Вт

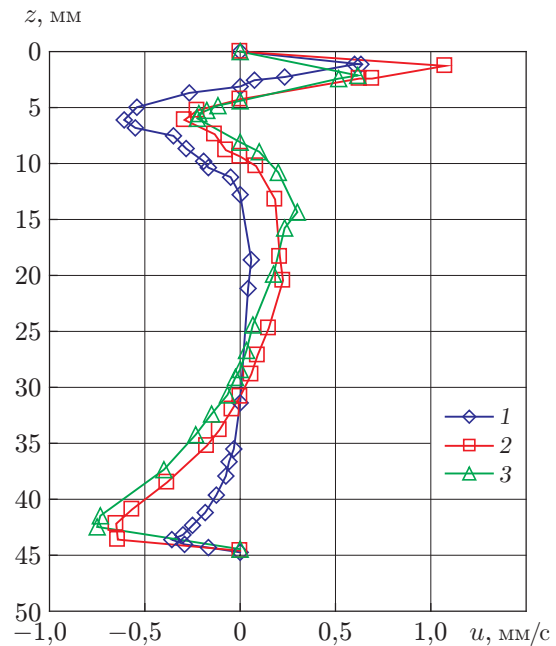


Рис. 5

Рис. 5. Профили скорости потоков жидкости вблизи фронта кристаллизации при различных значениях мощности подводимого к дополнительному нагревателю электрического тока (обозначения те же, что на рис. 4)

Проведенные исследования показали, что даже незначительный дополнительный нагрев задней части контейнера приводит к существенному изменению характера массообмена в середине слоя жидкости. Появляется мощный поток, движущийся к фронту кристаллизации и обеспечивающий поступление жидкости из задней части контейнера и смешивание ее с приповерхностным и придонным вихрями.

Сравнение скоростей потоков жидкости при различных значениях температуры дополнительного нагревателя (см. таблицу и рис. 5) показывает, что в контейнере образуется устойчивая гидродинамическая структура. Увеличение мощности подводимого к дополнительному нагревателю тока в четыре раза приводит к незначительному увеличению скорости потоков и размеров этой структуры.

**Выводы.** Таким образом, нагрев задней части контейнера при выращивании кристаллов методом ГНК позволяет существенно изменить массообмен в расплаве и обеспечивает более эффективное перемешивание. В то же время эксперименты показали, что при наличии дополнительного нагрева в середине контейнера формируется поток нагретой жидкости, движущийся к фронту кристаллизации. Это может приводить к формированию вогнутой межфазной границы и как следствие к накоплению загрязнений. Поэтому оптимальная интенсивность нагрева контейнера снизу зависит от тепловых и гидродинамических параметров конкретной ростовой системы, что требует проведения дополнительных исследований степени перемешивания расплава при сохранении плоской формы фронта кристаллизации.

## ЛИТЕРАТУРА

1. **Классен-Неклюдова М. В.** Рубин и сапфир / М. В. Классен-Неклюдова, Х. С. Баграсаров. М.: Наука, 1974.
2. **Gurov V. V., Tsvetkov E. G., Kirdyashkin A. G.** Features of beryllium aluminate crystal growth by the method of horizontally oriented crystallization // J. Cryst. Growth. 2003. V. 256. P. 361–367.
3. **Gurov V. V., Tsvetkov E. G.** Specific character of melt growth of low-temperature phase of aluminum beryllate // J. Cryst. Growth. 2008. V. 310. P. 229–233.
4. **Гуров В. В., Кирдяшкин А. Г.** Секториальное строение кристаллов хризоберилла, выращенных методом горизонтальной направленной кристаллизации // Неорган. материалы. 2001. Т. 37, № 1. С. 52–55.
5. **Гуров В. В., Кирдяшкин А. Г.** Физическое моделирование условий тепломассообмена при выращивании крупных кристаллов методом высокотемпературной горизонтальной направленной кристаллизации // ПМТФ. 2012. Т. 53, № 1. С. 98–104.
6. **Шлихтинг Г.** Теория пограничного слоя. М.: Наука, 1969.
7. **Маурах М. А.** Жидкие тугоплавкие окислы / М. А. Маурах, Б. С. Митин. М.: Metallurgia, 1979.

*Поступила в редакцию 8/X 2014 г.,  
в окончательном варианте — 10/VI 2015 г.*

---