



УДК 669.187.58

ИЗУЧЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОЛЯ ПРОФИЛИРОВАННЫХ МОНОКРИСТАЛЛОВ ВОЛЬФРАМА, ПОЛУЧАЕМЫХ ПЛАЗМЕННО-ИНДУКЦИОННЫМ СПОСОБОМ

В. А. Шаповалов¹, В. В. Якуша¹, Ю. А. Никитенко¹,
В. В. Долиненко¹, А. Н. Гниздыло¹, В. В. Жолудь²

¹Институт электросварки им. Е.О. Патона НАН Украины.
03680, г. Киев, ул. Боженко, 11. E-mail: office@paton.ua

²Институт металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины.
03680, г. Киев, бул. Академика Вернадского, 36. E-mail: metall@imp.kiev.ua

Рассмотрен вопрос экспериментального исследования температурного поля в профилированном монокристалле вольфрама при плазменно-индукционном способе выращивания. На основании данных прямых измерений температур в кристалле с помощью термопар ВР 5/20 выполнен анализ температурных градиентов в его объеме. Показано, что при данном способе выращивание монокристалла проходит в условиях практически плоского фронта кристаллизации, и термонапряженное состояние профилированного кристалла в основном определяется значением градиентов температур вдоль его ширины и высоты. Установлено, что максимальное значение температурных градиентов составляет соответственно 36 и 90 °С/мм, а зона их максимума сосредоточена вблизи фронта кристаллизации. Выявлено, что индукционный нагрев боковой поверхности монокристалла способствует уменьшению уровня температурных градиентов в его объеме. На расстоянии двух толщин кристалла от его верхнего торца формирование структуры монокристалла в твердой фазе происходит при постоянном градиенте температур. Выполнен сравнительный анализ пространственного распределения градиентов температур монокристаллов плазменно-дугового и плазменно-индукционного способов плавки. Экспериментально подтверждено, что плазменно-индукционный процесс формирования крупного профилированного монокристалла сопровождается меньшими (на 10...15 °С/мм) значениями градиентов температур в большей части его объема по сравнению с плазменно-дуговым процессом формирования цилиндрического кристалла диаметром 30 мм. Библиогр. 12, ил. 8.

Ключевые слова: профилированный монокристалл вольфрама; плазменно-индукционный способ; температурное поле; градиент температур; дислокации; температурные напряжения; эквивалентный конвективный теплообмен

Жесткие требования, предъявляемые к химической чистоте и структуре полупроводниковых монокристаллов, распространяются в настоящее время и на металлические монокристаллы, в частности на монокристаллы тугоплавких металлов. Вызвано это потребностью в новых функциональных материалах с особыми свойствами для техники будущего. Например, серьезной проблемой на пути практической реализации термоядерного реактора ИТЕР является выбор конструкционных материалов, прежде всего материалов для первой стенки камеры (особенно для пластин дивертора). В наибольшей степени для этой цели подходит монокристаллический вольфрам, способный обеспечить длительность

жизни стенки до 20 лет [1, 2]. Поэтому проблемы повышения качества монокристаллов вольфрама и совершенствования технологии их получения весьма актуальны.

Дефекты кристаллического строения, подобно примесям, оказывают влияние на многие свойства металлов. Установлено, что точечные дефекты в виде вакансий и их скоплений заметно влияют на электросопротивление, а дислокации и субграницы — на механические свойства.

Линейные структурные дефекты (дислокации) очень чувствительны к изменению условий формирования кристалла. Основным механизмом их образования в монокристаллах, выращенных из распла-



ва, помимо прорастания из затравки, является пластическая деформация под действием внутренних напряжений в слитке. В общем случае в условиях высоких температурных градиентов вблизи фронта кристаллизации наибольшее значение с точки зрения генерации дислокаций имеют вызванные ими температурные напряжения [3–7].

Необходимым этапом в процессе изучения закономерностей формирования дислокационной структуры кристаллов является детальное исследование тепловых условий их выращивания.

Среди существующих способов выращивания монокристаллов тугоплавких металлов из жидкой фазы способ плазменно-индукционной зонной плавки имеет преимущество из-за наличия двух независимых источников тепловой энергии. Это позволяет в данной технологии, по сравнению из электронно-лучевой и плазменно-дуговой, осуществлять гибкое управление температурным полем монокристалла в процессе его роста.

Некоторые аспекты исследования температурных полей в плоских монокристаллах вольфрама при плазменно-индукционной зонной плавке рассматривали в работе [8]. Оценку температурного поля осуществляли на основе экспериментальных данных измерения температуры поверхности кристалла оптическим пирометром. По ограниченному количеству замеров температуры рассчитаны усредненные температурные градиенты, которые не отражают истинную картину температурного поля в его объеме. Анализ температурных полей профилированных монокристаллов вольфрама, выполненный в работе [9] на основе результатов математического моделирования, в силу ряда идеализаций и упрощений, принятых при разработке тепловой модели процесса, носит обобщенный характер. Выявлен-

ные зависимости в формировании температурных полей показывают лишь качественное влияние источников нагрева на возможность управления тепловыми условиями формирования монокристаллов.

Оценить реальную картину температурного поля в теле монокристалла наиболее полно можно только по прямым экспериментальным данным. Это и определяет цель данной работы.

Методика проведения эксперимента. Исследование формирования пространственного теплового поля проводили на предварительно выращенном монокристалле, в теле которого зафиксированы горячие спаи термопар по схеме рис. 1. Процесс выращивания монокристалла имитировали путем наплавки верхнего слоя слитка кристалла с одновременной регистрацией показаний ЭДС термопар. Исследовали кристалл размером $20 \times 90 \times 160$ мм. Опыт выращивания профилированных монокристаллов вольфрама показал, что при этой высоте процесс роста становится квазистационарным.

В исследуемом кристалле с применением электроэрозионной прошивки выполнено 18 цилиндрических отверстий диаметром 1 мм, глубиной, равной половине толщины слитка. Они образуют три вертикальных ряда (I–III) по шесть глухих отверстий для термопар. Первый ряд расположен на оси симметрии монокристалла, второй и третий отстоят от него на расстоянии соответственно 35 и 70 мм. Горизонтальные ряды отверстий находятся на расстоянии 2, 5, 10, 30, 60 и 85 мм от верхнего торца кристалла.

Измерение температур выполняли вольфрам-рениевыми термопарами ВР 5/20 диаметром 0,2 мм со статической характеристикой типа А1. Минимизация уровня шумов измерений, обусловленных действием как тока высокочастотного индуктора частотой 66 кГц, так и сетевой помехи 50 Гц, обеспечена выполнением скрутки выводов термопар с шагом 10 мм и применением для оцифровки термопар интегрированного сигма-дельта АЦП типа AD7794 (фирма «Analog Devices»). Показания термопар верхнего ряда фиксировали с помощью трех одноканальных регистрирующих приборов РП-160, показания трех последующих горизонтальных рядов — микропроцессорным контроллером [10], данные от двух нижних рядов — с помощью шестиканального автоматического потенциометра КСП-4. Температуру холодного спаи термопар контролировали полупроводниковым терморезистором ММТ-4, расположенном непосредственно в камере печи. В высокотемпературной области вблизи фронта кристаллизации применяли линейную аппроксимацию.

Результаты исследования. При выращивании и охлаждении до комнатной температуры плоского монокристалла в нем возникают градиенты температур по высоте $\partial T / \partial h$, ширине $\partial T / \partial l$ и толщине $\partial T / \partial \delta$. В зависимости от соотношения этих величин может возникнуть неравномерное расширение параметров решетки в разных частях кристалла, что вы-

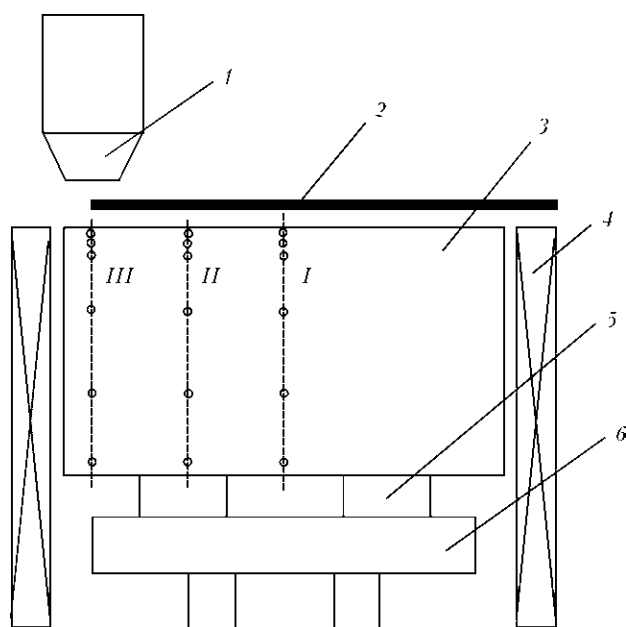


Рис. 1. Схема плазменно-индукционного способа выращивания профилированных монокристаллов и мест размещения термопар: 1 — плазматрон; 2 — пруток; 3 — монокристалл; 4 — индуктор; 5 — подставка; 6 — поддон



Рис. 2. Внешний вид фронта кристаллизации

зывает в нем появление сжимающих и растягивающих напряжений.

С помощью глубокого травления поверхности шлифов продольных срезов профилированных монокристаллов вольфрама обнаружено, что при плазменно-индукционном способе их выращивание осуществляется в условиях практически плоского фронта кристаллизации (рис. 2). Следовательно, термонапряженное состояние кристалла в основном будет определяться только двумя градиентами: $\partial T / \partial h$ и $\partial T / \partial l$.

При формировании монокристалла плазменно-дуговой источник нагрева совершает возвратно-поступательное перемещение ванны жидкого металла по поверхности наращивания, вызывая периодические изменения температуры в каждой точке кристалла. Установлено, что при скорости движения плазматрона менее 10 мм/мин наступает квазистационарный процесс, и формируемое температурное поле в слитке не зависит от скорости движения плазматрона, а определяется лишь его местоположением.

В тепловом отношении наиболее неблагоприятные условия в монокристалле формируются при нахождении плазматрона на одном из концов слитка (рис. 1). Согласно экспериментальным данным осевое распределение температур по высоте и ширине монокристалла имеет ниспадающий характер (рис. 3, 4). Само по себе распределение температур дает только качественную оценку температурного

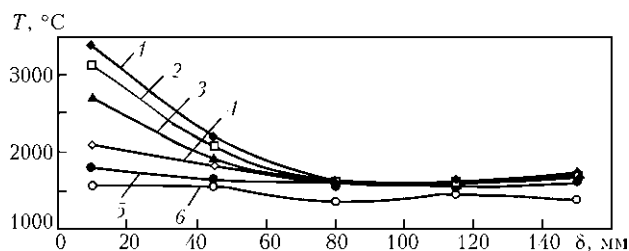


Рис. 3. Распределение температур по ширине δ монокристалла на горизонте от верхнего торца кристалла, мм: 1 – 2; 2 – 5; 3 – 10; 4 – 30; 5 – 60; 6 – 85

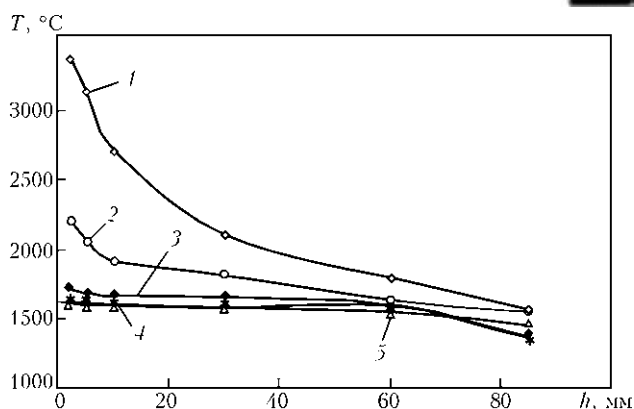


Рис. 4. Распределение температур по высоте h монокристалла в сечении от края кристалла, мм: 1 – 10 (под плазматроном); 2 – 45; 3 – 150; 4 – 80 (центр); 5 – 115

поля, позволяющую определить степень нагрева одной области кристалла относительно другой.

Распределения осевых градиентов температур в теле монокристалла, в отличие от приведенного распределения температур, дает количественную оценку температурного поля. С его помощью можно проследить динамику нагрева (охлаждения), определить термонапряженные зоны монокристалла.

На рис. 5 и 6 представлены зависимости температурных градиентов по ширине и высоте монокристалла. Они состоят из горизонтальных и наклонных отрезков прямых. Максимальный градиент температур по ширине кристалла находится у верхнего торца, имеет постоянное значение на расстоянии 0,5 δ от края ванны и равен 36 °C/мм. С

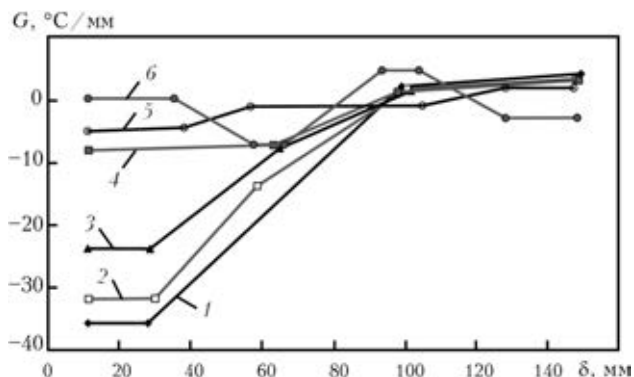


Рис. 5. Распределение градиентов температур G по ширине монокристалла на горизонте от верхнего торца кристалла, мм: 1 – 2; 2 – 5; 3 – 10; 4 – 30; 5 – 60; 6 – 85

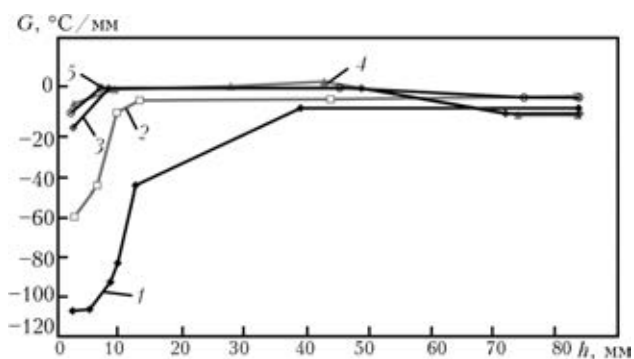


Рис. 6. Распределение градиентов температур G по высоте монокристалла в сечении от края кристалла, мм: 1 – 10 (под плазматроном); 2 – 45; 3 – 150; 4 – 80 (центр); 5 – 115

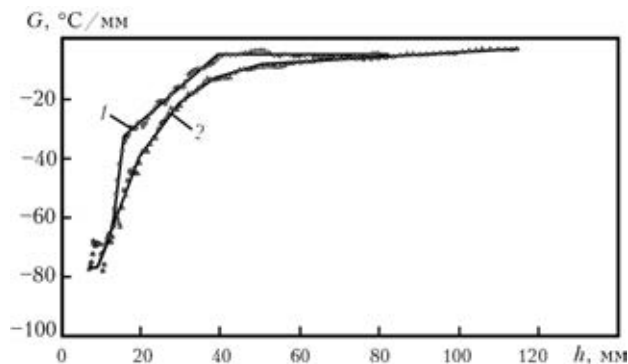


Рис. 7. Распределение градиентов температур G по высоте монокристаллов в зависимости от способа выращивания: 1 – плазменно-индукционный; 2 – плазменно-дуговой [12]

увеличением этого расстояния степень влияния плазменного источника нагрева на распределение температур линейно снижается. На расстоянии 4,5δ оно уже практически нивелируется ($\partial T / \partial l = \text{const}$). В глубь монокристалла $\partial T / \partial l$ уменьшается по абсолютному значению, но характер зависимости сохраняется, за исключением нижней части, на которую влияет водоохлаждаемый поддон. Максимальный градиент температур по высоте слитка $\partial T / \partial h$ находится на оси плазматрона в узкой зоне на расстоянии до 3 мм от фронта кристаллизации и составляет 90 °C/мм. С удалением от фронта кристаллизации он уменьшается по абсолютному значению. На расстоянии ниже 2δ от верхнего торца кристалла, за исключением зон влияния поддона, реализуется режим плазменно-индукционного нагрева практически из $\partial T / \partial h = \text{const}$. Его можно рассматривать как случай свободного температурного изгиба [11], при котором не возникают термоупругие напряжения.

Важное практическое значение имеет определение условий теплообмена монокристалла с окружающей средой, которые соответствуют экспериментально определенному температурному полю. Принимая, что все граничные условия, которые приводят к одному и тому же температурному полю в рассматриваемом теле, являются эквивалентными, в работе [12] предложено анализировать теплообмен монокристалла вольфрама при плазменно-дуговом выращивании в зависимости от условий эквивалентного конвективного теплообмена.

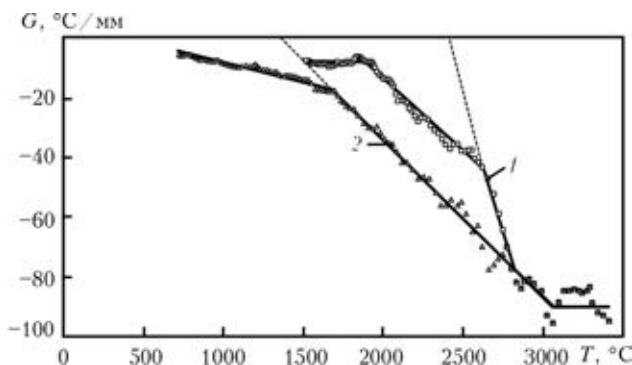


Рис. 8. Распределение осевых градиентов температур T , °C монокристаллов вольфрама в зависимости от способа выращивания: 1 – плазменно-индукционный; 2 – плазменно-дуговой [12]

Применение дополнительного источника индукционного нагрева при плазменно-индукционном способе выращивания позволяет эффективно влиять на условия теплообмена кристалла с окружающей средой. Таким образом, управляя температурными градиентами в теле слитка, мы можем контролировать степень совершенства выращиваемых монокристаллов.

На рис. 7, 8 представлены экспериментальные данные распределения осевых градиентов температур $\partial T / \partial h$ для цилиндрического монокристалла вольфрама плазменно-дуговой плавки диаметром 30 мм и плоского монокристалла вольфрама плазменно-индукционной плавки [12].

Формирование большого профилированного монокристалла вольфрама при плазменно-индукционном способе выращивания, кроме небольшой зоны под фронтом кристаллизации, сопровождается меньшими на 10...15 °C/мм температурными градиентами в твердой фазе. Причем в части кристалла ниже 40 мм от фронта затвердевания процесс выращивания проходит при постоянном градиенте температур.

Охарактеризовать условия теплообмена рассматриваемых монокристаллов вольфрама позволяют экспериментальные зависимости градиентов в виде $\partial T / \partial h = f(T)$. Тангенс угла наклона их прямолинейных участков пропорционален эквивалентным коэффициентам теплообмена кристаллов с окружающей средой, а точки пересечения с осью температур соответствуют эквивалентным температурам окружающей среды. В области температур перехода с горизонтальных участков в наклонные существует зона максимального охлаждения кристалла. Наклонный участок прямой $\partial T / \partial h = f(T)$ означает, что в этом диапазоне температур поверхность слитка в процессе роста охлаждается по закону Ньютона, когда эквивалентная температура окружающей среды и коэффициент теплообмена являются постоянными величинами.

Из приведенных зависимостей следует, что в узкой зоне у фронта кристаллизации происходит интенсивное охлаждение как плоского монокристалла плазменно-индукционной зонной плавки, так и небольшого цилиндрического монокристалла плазменно-дуговой плавки. Однако следует заметить, что при этом эквивалентная температура окружающей среды при выращивании в условиях плазменно-индукционного процесса существенно выше, чем при плазменно-дуговом, и составляет около 2400 °C. В дальнейшем благодаря дополнительному высокочастотному нагреву поверхности кристалла интенсивность его охлаждения падает и становится меньше, чем при плазменно-дуговом способе, а эквивалентная температура окружающей среды на 400 °C превосходит эквивалентную температуру плазменно-дугового процесса и составляет около 1800 °C.

Анализ температурного поля профилированного монокристалла плазменно-индукционной зонной плавки показывает, что уровень максимальных температурных градиентов в теле слитка составляет около 90 °C/мм. При этом абсолютная температура



участков максимальных градиентов находится в зоне горячей деформации (выше $0,6T_{пл}$). Дислокации, возникающие под действием этих температурных градиентов, аннигилируют. Зоны с меньшими температурными градиентами либо зоны, где реализуются условия свободного температурного изгиба, имеют абсолютную температуру также не ниже температуры начала горячей деформации ($0,5T_{пл}$).

Установлено, что средняя плотность ямок травления (дислокаций) внутри субзерен профилированных монокристаллов вольфрама составляет $2 \cdot 10^5 \text{ см}^{-2}$, а в субграницах — $(1...5) \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$. Это соответствует плотности дислокаций относительно совершенных монокристаллов вольфрама электронно-лучевой зонной плавки.

Выводы

1. Экспериментально по данным термометрических преобразователей температур ВР 5/20 проведен анализ температурного поля в профилированном монокристалле вольфрама при плазменно-индукционной зонной плавке. Установлено, что максимальный градиент температур в теле кристалла возникает на оси плазмотрона в узкой зоне у фронта кристаллизации и не превышает $90 \text{ }^\circ\text{C}/\text{мм}$.

2. Показано, что благодаря дополнительному индукционному источнику нагрева при плазменно-индукционном способе выращивания крупного профилированного монокристалла вольфрама $20 \times 90 \times 160 \text{ мм}$ в большей части его объема уровень возникающих температурных градиентов на $10...15 \text{ }^\circ\text{C}/\text{мм}$ ниже, чем у небольшого цилиндрического монокристалла вольфрама диаметром 30 мм , который выращивается плазменно-дуговым способом. Эквивалентный конвективный теплообмен монокристалла осуществляется из окружающей среды, которая в низкотемпературной области имеет эквивалентную температуру на $400 \text{ }^\circ\text{C}$ выше, чем при плазменно-дуговом процессе, и составляет около $1800 \text{ }^\circ\text{C}$.

3. Определено, что абсолютная температура нагрева наиболее термонапряженных зон профилированного монокристалла вольфрама в процессе роста не ниже температуры начала горячей деформации ($0,5T_{пл}$). Дислокации, вызванные этими термонапряжениями, при длительном процессе выращива-

ния вследствие активации релаксационных процессов будут аннигилировать. Средняя плотность дислокаций внутри субзерен составляет $2 \cdot 10^5 \text{ см}^{-2}$, а в субграницах — не более $(1...5) \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$.

1. Смирнов В. П. Термоядерная энергетика — крупнейший международный инновационный проект // Рос. хим. журнал. — 2008. — ЛII, № 6. — С. 79–94.
2. Филатов О. Г., Мазуль И. В. Экспериментальный комплекс НИИЭФА для имитации эксплуатационных факторов «первой стенки» реактора ИТЭР // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Термоядерный синтез. — 2003. — Вып. 3. — С. 3–31.
3. Манохин А. И., Бурханов Г. С. Современное состояние проблемы металлических монокристаллов // Высокочистые и монокристаллические металлические материалы. — М.: Наука, 1987. — С. 5–13.
4. Кервалишвили И. Д., Щелкин Ю. Ф. Тепловые условия — фактор, определяющий получение совершенных кристаллов // Физика и химия обработки материалов. — 1982. — № 5. — С. 70–78.
5. Предтеченский Б. С., Старостина Л. С. Дислокации в монокристаллах молибдена, полученных зонным плавлением // Рост и дефекты металлических кристаллов / Под ред. Д. Е. Овсиенко. — Киев: Наук. думка, 1972. — С. 213–217.
6. Глебовский В. Г., Семенов В. Н., Ломейко В. В. Влияние условий кристаллизации на структурное совершенство монокристаллов вольфрама // Высокочистые и монокристаллические металлические материалы / Под ред. А. И. Манохина. — М.: Наука, 1987. — С. 38–42.
7. Исследование условий образования дислокаций в монокристаллах арсенида галлия при выращивании из расплава / В. В. Освенский, М. Г. Мильвидский, В. В. Кулагин и др. // Рост и дефекты металлических кристаллов / Под ред. Д. Е. Овсиенко. — Киев: Наук. думка, 1972. — С. 251–261.
8. Температурные поля в крупных монокристаллах вольфрама плоской формы при плазменно-индукционном методе выращивания / А. А. Коваленко, В. А. Шаповалов, Ю. В. Латаш и др. // Пробл. спец. электротехнологии. — Киев, 1994. — № 3, 4. — С. 48–52.
9. Шаповалов В. О. Наукові та технологічні основи плазмово-індукційного вирощування крупних монокристалів тугоплавких металів: Автореф. дис. ... д-ра техн. наук (НАН України. Ін-т електротехнологій ім. Є. О. Патона). — Київ, 2003. — 36 с.
10. Уточнение инерционных свойств термопар, применяемых при исследованиях металлургических и сварочных процессов / В. В. Долиненко, Е. В. Шаповалов, В. А. Коляда и др. // Современ. электротехнология. — 2012. — № 4. — С. 33–36.
11. Мильвидский М. Г., Освенский В. Б. Структурные дефекты в монокристаллах полупроводников. — М.: Металлургия, 1984. — 256 с.
12. Анализ тепловых условий получения монокристаллов тугоплавких металлов с использованием плазменно-дугового источника нагрева / И. Д. Кервалишвили, Г. С. Бурханов, Ю. Ф. Щелкин и др. // Металлические монокристаллы: Сб. науч. тр. — М.: Наука Публицерс, 1990. — С. 22–34.

The paper deals with experimental study of temperature field in a profiled tungsten single-crystal at plasma-induction growth method. Analysis of temperature gradients in the crystal volume was performed proceeding from the data of direct measurements of temperatures in the crystal with ВР 5/20 thermocouples. It is shown that with this method single-crystal growing proceeds under the conditions of practically plane solidification front, and thermostressed state of profiled single-crystal is mainly determined by the value of temperature gradients along its width and height. It is established that the maximum value of temperature gradients is equal to 36 and $90 \text{ }^\circ\text{C}/\text{мм}$, respectively, and the zone of their maximum is concentrated near the solidification front. It is found that induction heating of single-crystal side surface promotes lowering of the level of temperature gradients in its volume. At the distance of two crystal thicknesses from its upper face formation of single-crystal structure in the solid phase proceeds at a constant temperature gradient. Comparative analysis of spatial distribution of temperature gradients in single-crystals of plasma-arc and plasma-induction melting processes was performed. It is experimentally confirmed that plasma-induction process of forming a large profiled single-crystal is accompanied by smaller (by $10...15 \text{ }^\circ\text{C}/\text{мм}$) values of temperature gradients in the greater part of its volume, compared to plasma-arc process of formation of a cylindrical crystal of 30 мм diameter. 12 Ref., 8 Figures.

Keywords: profiled tungsten single-crystal; plasma-induction method; temperature field; temperature gradient; dislocations; thermal stresses; equivalent convective heat exchange

Поступила 09.01.2014