

УДК 532.517.4:534.13:536.42+539.1

© 1998 г. В.О. ГЕРМАН, В.Д. ТРИФОНОВ, В.С. УСПЕНСКИЙ

ОБ ЭФФЕКТЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ МИКРОТУРБУЛЕНТНОГО ТЕЧЕНИЯ НА РОСТ КРИСТАЛЛОВ ГАЛЛИЯ ИЗ РАСПЛАВА

Обсуждаются результаты эксперимента по росту кристаллов галлия в условиях микро-турбулентного режима течения в расплаве в неоднородном вибрационном поле. Вибрационное поле в электропроводном расплаве генерируется за счет совместного наложения профилированного постоянного и осциллирующего магнитных полей. К особенностям течения относится возникновение интенсивного мелкомасштабного турбулентного течения, гомогенизирующего тепловые и концентрационные поля в расплаве в окрестности растущего кристалла. Зарегистрированы высокие значения коэффициентов переноса, в частности эффективных коэффициентов теплопроводности и диффузии в расплаве, обеспечивающие высокую степень переохлаждения расплава в окрестности фронта кристаллизации и кинетический механизм роста монокристалла.

Возросший интерес к проблеме влияния вибраций на гидродинамику течений во многом вызван их использованием в процессах тепломассообмена как в земных условиях, так и в условиях микрогравитации [1, 2]. До последнего времени главным образом рассматривались задачи, моделирующие процессы, протекающие в замкнутых объемах в условиях микрогравитации. В этом случае в неоднородно нагретой жидкости в присутствии регулярной высокочастотной вибрации возникает среднее поле сил, приводящее к перераспределению гидродинамических параметров в объеме [3]. Такие задачи о взаимодействии тепловой и термовибрационной конвекций решались теоретически для различных геометрий и предположений [4–6] (преимущественно в рамках модели Буссинеска) [4, 6] и, в частности, с учетом эффектов на свободной поверхности. Проводились специально поставленные тонкие эксперименты по наблюдению и регистрации явления в земных условиях [7].

Предметом анализа в отмеченных работах были осредненные течения, границы их устойчивости в областях параметров задачи. При этом предполагалось, что спектр турбулентных пульсаций высокочастотный и не оказывает влияние как на осредненные течения, так и на коэффициенты переноса, предполагающиеся постоянными.

Критическим параметром задач при наличии газовой полости в жидкости при вибрации сосуда оказывается ориентация оси вибрации сосуда. Как показывают простейшие эксперименты, смена оси вибрации сосуда с вертикального направления (совпадающего с вектором силы тяжести) на горизонтальное или наклонное для конечных амплитуд и умеренных частот вибрации (до 100 Гц) может приводить к явлениям резонанса для счетного набора частот и интенсивной нерегулярной волновой динамике свободной поверхности жидкости, захвату и дроблению газовых полостей на несколько объемов, нерегулярному хаотическому движению газовых пузырей в объеме жидкости. Поэтому изучение влияния вибрации в объеме с жидкостью с помощью вибрации самого сосуда ограничивается случаями отсутствия газовых каверн, выбором нерезонансных частот вибрации или специальным выбором оси вибрации по отношению к вектору силы тяжести.

В реальных условиях земного тяготения и тепловых градиентов в расплавах

термовибрационные силы оказываются слабыми и способны конкурировать с архимедовым полем сил (приводящим к тепловой конвекции) в весьма редких специальных случаях. К последним можно отнести течение в расплаве, возникающее в геометрии роста кристаллов способом Бриджмена [8], отличающимся отсутствием свободных границ, выбором теплового поля, согласованного со скоростью перемещения межфазной границы, и характеризующимся низкими тепловыми конвективными потоками в расплаве.

Этот способ используется преимущественно при росте кристаллов из расплава при экспериментах по кристаллизации в космосе [9]. Создание вибрационных микроускорений в сосуде (в том числе и со свободной поверхностью) возможно также путем акустического или используемого в настоящей работе электромагнитного воздействия. В последнем случае осциллирующая сила Лоренца, возникающая в соосных переменном и постоянном неоднородном магнитных полях, приложена собственно к каждой частице жидкости в объеме и создает неоднородное распределение амплитуды вибрации в объеме. При неоднородной вибрации возникают сильные (по сравнению с однородной) осциллирующие напряжения Герца в жидком объеме расплава [10]. Такой характер воздействия приводит в случае средних частот осцилляции, с одной стороны, к интенсивной мелкомасштабной турбулентности, с другой – к перераспределению давления в объеме и искривлению свободной поверхности расплава. Проведенные эксперименты показали, что в условиях мелкомасштабной турбулентности предположение о постоянстве коэффициентов переноса оказывается неоправданным и транспортные характеристики в расплаве могут существенно изменяться за счет эффективного турбулентного теплообмена.

Для низких частот вибрации, когда возникают условия параметрического резонанса свободной поверхности, задача о динамике жидкости решалась многими авторами для различных геометрий свободной поверхности (см. обзор [11]).

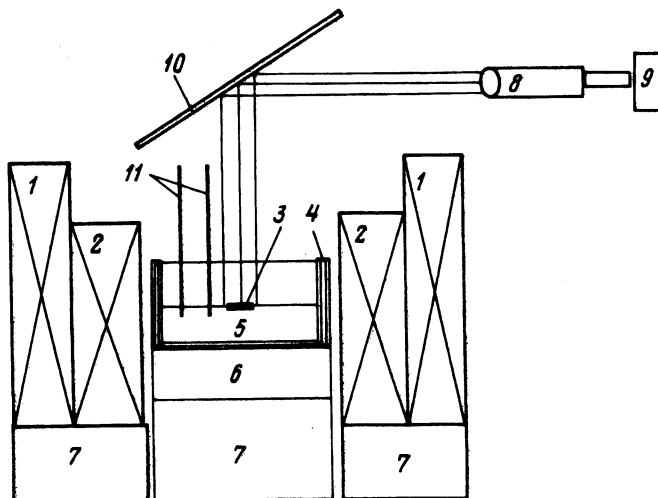
Рассматриваемая задача связана с приложениями физики роста кристаллов. Ставится задача исследовать воздействие вибрации в магнитном поле на расплав и процесс роста кристалла.

1. Экспериментальная установка. Схема экспериментальной установки представлена на фиг. 1. Внутренний диаметр тигля с расплавом галлия составляет 125 мм, глубина слоя жидкого галлия 65 мм. Оболочка тигля снабжена системой водоохлаждения, позволяющей регулировать температуру расплава.

Внешняя система катушек, питаемая постоянным электрическим током, обеспечивает в полости индукцию магнитного поля в вертикальном направлении до 0,25 Т. Переменное магнитное поле поддерживается электрическим током I во внутренней катушке, частота которого варьируется в пределах 20 Гц – 1 кГц. При этом индукция осциллирующей синусоидальной компоненты составляет 0,14 Т для низких частот ($I < 30$ А) и 0,005 Т для высоких частот ($I \leq 2$ А).

Опоры катушек и тигля с расплавом выполнены отдельными, исключающими передачу вибраций на расплав через системы крепления. Система регистрации изображения снабжена зеркалом и длиннофокусным объективом, позволяющим устранить влияние магнитных полей на регистрирующую аппаратуру и получать детальное изображение поверхности расплава с расстояния 2,5 м.

Датчики регистрации поля температур включали в себя два типа игольчатых зондов. Первый тип представляет собой четыре электрически изолированные от расплава игольчатые платиново-константановые (Pt-Ct) термопары (размер спая-королька не превышает 0,2 мм, потенциал гальванической пары 30 $\mu\text{V/K}$), закрепленные в одной плоскости в узлах квадрата со стороной 6 мм. Другой тип зонда представляет собой тот же узел с заменой корольковых термопар на контактные [12], где электрическая связь обеспечивается жидкометаллическим мостиком расплава. В последнем случае термоэлектрический сигнал генерируется последовательным соединением гальванических пар Pt-Ga и Ga-Ct (эквивалентный прямому соединению Pt-Ct). Расстояние между Pt- и Ct-контактами в каждой термопаре составляет 0,3 мм. Быстродействие последних термопар оказывается не хуже 1 мс (для обычных корольковых термопар быстродействие имеет порядок 0,2–0,5 с).



Фиг. 1. Принципиальная схема экспериментальной установки: 1 – катушка постоянного тока, 2 – катушка переменного тока, 3 – растущий кристалл, 4 – тигель с охлаждением, 5 – расплав галлия, 6 – демпфер, 7 – независимые опоры, 8 – объектив, 9 – фотоаппарат, 10 – зеркало, 11 – зонды-термопары

Недостатком контактных термопар является их восприимчивость к наводкам со стороны переменного электромагнитного поля.

Ввод и обработка сигналов осуществлялись с помощью широкополосного аналогового усилителя с электронной термокомпенсацией и коэффициентом усиления $k = 1500$. Данные на выходе усилителя передавались в 2-канальный цифровой осциллограф DATALAB-1080 с системой коммутации с ПК на базе параллельного порта IEEE-488 (HP-IB).

Определение поля скорости проводилось по показаниям одноименных пар игольчатых зондов в системе контактных термопар. Метод определения скорости основан на теории гартмановского погранслоя в окрестности неподвижного зонда в постоянном магнитном поле [13] и использует ту физическую особенность, что движение электропроводного расплава в плоскости, перпендикулярной вектору магнитного поля, генерирует электрическое поле в расплаве, регистрируемое зондами. Усложняющим обстоятельством применения отмеченного метода в рассматриваемой задаче является присутствие осциллирующей компоненты магнитного поля и необходимость предварительной фильтрации сигнала для устранения помех со стороны токов Фуко в расплаве.

Визуализация крупномасштабных течений проводилась с помощью стратифицированного слоя воды и керосина на поверхности галлия с частицами алюминиевой пудры на межконтактной границе. По анализу изображений и фотографиям определялись: форма свободной поверхности расплава галлия, размер турбулентных ячеек в расплаве, скорость и траектории трековых частиц в визуализирующем стратифицированном слое, скорость роста кристаллов галлия (фиг. 2).

2. Результаты экспериментов. В общем случае при росте монокристаллов из расплава может иметь место либо диффузный, либо кинетический с атомно-гладким фронтом кристаллизации (гранный рост) механизм роста монокристалла, зависящий от условий переохлаждения расплава на фронте кристаллизации, поля дислокаций на нем, а также транспортных свойств в расплаве (растворе) [14]. Для транспорта примесей в растворах принято разделять механизмы на диффузионный и конвективный. В условиях диффузионного механизма транспорта примесей при росте монокристаллов отсутствует или сильно подавлен конвективный источник примесных концентрационных осцилляций на фронте кристаллизации [15]. В настоящее время такие условия обеспечиваются лишь в условиях микрогравитации.



Фиг. 2. Рост монокристалла галлия из расплава в микротурбулентном гидродинамическом поле. Размер ограненного кристалла на фотографии 23 мм

Наиболее трудно контролируемым механизмом роста кристаллов с точки зрения неоднородности внедрения примесей и температурных прыжков роста, приводящих часто к микро- и макродефектам, является диффузионно-конвективный механизм регуляции теплового и концентрационного полей. В условиях интенсивной вынужденной конвекции (принудительного перемешивания) удастся добиться преимущественно конвективного транспорта примеси к поверхности кристалла, однако этот способ успешно применяется только при росте кристаллов из пересыщенных изотермических растворов. При росте кристаллов из расплава в неоднородном температурном поле интенсивное принудительное перемешивание приводит к резким температурным осцилляциям на фронте кристаллизации и прыжкам роста с захватом примесей, являющихся причиной полосчатой неоднородности или нарушениями монокристаллической структуры кристаллов.

Рассматриваемый в работе рост кристаллов в вибрационном поле позволяет существенно повысить эффективные коэффициенты диффузии и теплопроводности в расплаве, обеспечив существование мелкомасштабного гидродинамического турбулентного поля в окрестности фронта кристаллизации. При этом благодаря микротурбулентной структуре течения устраняются конечные температурные пульсации в тепловом поле и обеспечивается существование квазистационарного поля температур в окрестности растущего кристалла. Проведенные в работе эксперименты показывают, что в условиях микротурбулентного течения имеет место кинетический механизм роста монокристаллов галлия.

На фиг. 3 представлен общий вид свободной поверхности расплава галлия в вибрационном поле. Случай *a* относится к стационарному режиму со стоячими поверхностными волнами (малая амплитуда вибрации). Случай *b* относится к ячеистой конвекции в расплаве (высокая амплитуда вибрации). Характерный размер турбулентных конвективных ячеек зависит от частоты вибрационного поля и оказывается порядка 3–6 мм ($\nu = 30\text{--}50$ Гц). Свободная поверхность расплава оказывается слегка вогнутой, как и в экспериментах [10].

С увеличением частоты переменного поля (>120 Гц) происходит ослабление эффекта искривления свободной поверхности, что оказывается заметным и по уровню "размытости" изображения формы границ на фиг. 3. Ослабление искривления связано с



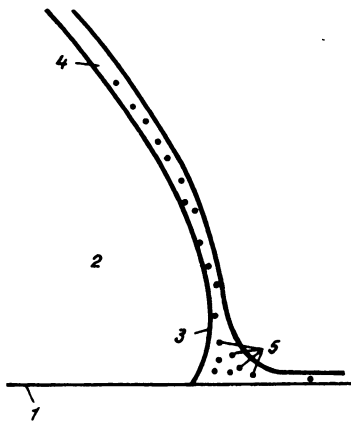
Фиг. 3. Общий вид свободной поверхности расплава галлия в вибрационном поле: *а* – стационарный режим со стоячими поверхностными волнами (малая амплитуда вибрации), *б* – ячеистая конвекция в расплаве (высокий уровень амплитуды вибрации). Характерный размер турбулентных конвективных ячеек составляет 3 мм

двумя эффектами. С одной стороны, происходит уменьшение амплитуды вибраций в жидкости с ростом частоты в силу инерциальных свойств расплава, с другой – оказывает влияние электромагнитный скин-эффект, когда возбуждение вибрации для больших частот оказывается чисто поверхностным. Простая оценка толщины скин-слоя для значений электропроводности жидкого галлия и частот 200 Гц дает величину порядка нескольких миллиметров. В связи с экранированием осциллирующей компоненты магнитного поля скин-слоем основные эксперименты проводились в области умеренных электромагнитных частот 20–50 Гц.

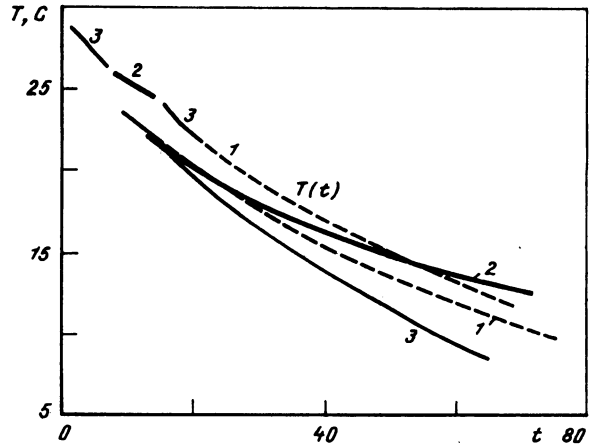
Эксперименты показывают, что в горизонтальной проекции конвективные ячейки имеют вытянутую поперек движения чечевичную структуру. При дальнейшем увеличении амплитуды вибрации положение конвективных ячеек становится нестационарным. Специальные эксперименты с несмачивающим расплав галлия мениском стратифицированного слоя вода – керосин с маркерами на внутренней границе (фиг. 4) позволяют дать оценку скорости движения галлия в турбулентных ячейках расплава. Скорость движения маркеров в визуализирующем слое по анализу последовательных видеокладов составляла порядка 0,2 м/с. Движение в конвективных ячейках происходит в вертикальной плоскости.

Выращивание монокристаллов галлия (температура плавления расплава 29,8 °С, плотность твердой фазы $\rho = 5,9 \text{ г/см}^3$) проводилось из предварительно приготовленной затравки. На начальном этапе процесса производился индукционный разогрев расплава с частичным подплавлением затравки. На втором этапе осуществлялось снижение температуры расплава с помощью системы водяного охлаждения в боковых стенках и донной части тигля до значений ниже равновесной температуры кристаллизации. При этом происходило разрастание свободно плавающей в расплаве затравки (фиг. 2). Отличительной особенностью галлия является пониженная плотность твердой фазы по сравнению с жидкой. На фиг. 5 представлены фотографии монокристалла и поликристалла галлия, полученные соответственно в поле вибрации и в отсутствие наложенных полей при одинаковых затравках и прочих равных условиях. Параметры приложенных полей составляли: индукция постоянного магнитного поля $B_0 = 0,14 \text{ Т}$, электромагнитная индукция осциллирующего поля $L = 0,03 \text{ Т}$, частота приложенного поля $\nu = 50 \text{ Гц}$. Скорость естественного роста кристаллов была переменной и на завершающем этапе для быстрорастущих граней составляла: в вибрационном поле 0,66 мм/мин; без поля 0,27 мм/мин.

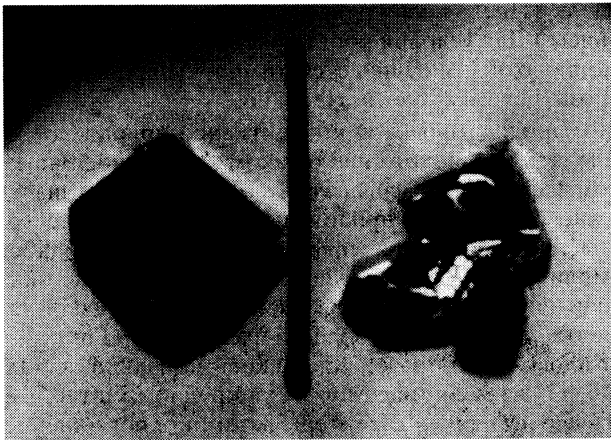
Для определения эффективной теплопроводности галлия в зависимости от параметров вибрации был проведен специальный эксперимент по охлаждению расплава в приложенном вибрационном поле. Тепловое сопротивление стенки, изготовленной из плексигласа, является определяющим при охлаждении расплава в тигле. В условиях



Фиг. 4



Фиг. 6



Фиг. 5

Фиг. 4. Схема эксперимента с маркерами и стратифицированным мениском вода – керосин на поверхности расплава галлия по оценке скорости движения в конвективных ячейках расплава: 1 – поверхность расплава галлия; 2 – слой воды, 3 – водяной мениск, 4 – слой керосина, 5 – маркеры

Фиг. 5. Сравнительные результаты по росту кристаллов галлия в микротурбулентном поле вибрации и без поля

Фиг. 6. Кривые темпов охлаждения расплава при частоте 30 Гц и различных параметрах наложенной вибрации. Единице времени соответствует шаг 30 с. При $B_0 = 0,22 T$, $L = 0,04 T$ (1) и $L = 0,06 T$ (2); $B_0 = 0$, $L = 0$ (3)

вибрации пристенные слои, где помещены термопары, обеспечиваются интенсивным тепловым потоком из центральной области расплава. Начальные условия при охлаждении в эксперименте поддерживаются однородными с $T = \text{const}$. В момент времени $t = 0$ включается система охлаждения. Система уравнений в конечных разностях и начальных условий к ним, описывающая режим охлаждения в отсутствие вибрации и при ее наличии, запишется в традиционной форме

$$\frac{\partial T_1}{\partial t} = \lambda_{vib} \frac{T_0 - T_1}{l} - q_w, \quad \frac{\partial T_2}{\partial t} = \lambda_{mol} \frac{T_0 - T_2}{l} - q_w$$

$$T_1 = T_0, \quad T_2 = T_0 \quad (t = 0)$$

где T_1, T_2 – температура расплава в окрестности стенки в присутствии вибрации и без нее; T_0 – начальная температура расплава; $\lambda_{vib}, \lambda_{mol}$ – эффективная теплопроводность расплава в поле вибрации и без нее; l – характерный линейный масштаб задачи, при оценках задаваемый равным радиусу тигля с расплавом. Тепловой поток на стенку q_w предполагается лишь функцией температуры в окрестности стенки, не зависящий от характеристик вибрационного поля.

Исключая из приведенных выше уравнений q_w , получим связь между эффективным коэффициентом теплопроводности в поле вибрации и его аналогом в отсутствие наложенной вибрации

$$\lambda_{vib} = \lambda_{mol} \frac{T_0 - T_2}{T_0 - T_1} + \frac{l}{(T_0 - T_1)} \left(\frac{\partial T_1}{\partial t} - \frac{\partial T_2}{\partial t} \right)$$

температура и скорость изменения температуры берутся из экспериментально полученных температурных профилей (фиг. 6). Кроме трех кривых, описывающих режимы охлаждения при различных уровнях вибрации, представлен температурный профиль при последовательном изменении параметров вибрации непосредственно в течение одного эксперимента. (Последняя кривая для наглядности приподнята над своим истинным положением.) Для условий роста кристалла в вибрационном поле величина эффективной теплопроводности отличается от молекулярного значения в 2,14 (режим 1 на фиг. 6) и 3,15 раза (режим 2) соответственно.

Основываясь на гидродинамической конвективной природе турбулентного теплопереноса, можно сделать предположение о таком же соотношении между эффективным коэффициентом диффузии в расплаве и его молекулярным значением.

Для умеренных частот вибрации приложенного осциллирующего магнитного поля ($\nu < 75$ Гц) величина эффективного коэффициента теплопроводности зависит линейным образом от амплитуды вибрации. Зависимость от частоты оказывается заметно более слабой и нелинейной. Максимальные значения эффективной теплопроводности в условиях эксперимента оказывались в области частот 30–40 Гц.

Ранее предполагалось, что образование вихрей, связанное с явлением обратного каскада энергии [16, 17] из мелкомасштабных в крупномасштабные вихревые структуры, может носить нерегулярный характер с взаимным поглощением, укрупнением и дальнейшей диссипацией энергии в придонном гартмановском пограничном слое, как это имеет место в задачах двумерной турбулентности в магнитном поле, детально исследованном в экспериментах с ртутью [18, 19]. Тем не менее медленные крупномасштабные в рамках задачи движения расплава в горизонтальной плоскости замечены не были. Анализ проводился по показаниям потенциальных зондов. Чувствительность метода определения поля скорости в условиях эксперимента ограничивались величинами $3 \cdot 10^{-3} - 4 \cdot 10^{-4}$ м/с. Прямому визуальному наблюдению движения медленных крупных вихрей препятствовало образование окисной пленки на свободной поверхности галлия, в том числе и в инертной атмосфере. Для окончательного исследования вопроса поведения турбулентного спектра в задаче и изучения взаимодействия микротурбулентного течения с крупномасштабными образованиями предстоит повысить чувствительность метода определения поля скорости.

Заключение. Проведенное экспериментальное исследование и качественный теоретический анализ роста полупроводниковых кристаллов во внешнем неоднородном поле вибрации показали существенное влияние вибрационного воздействия на форму свободной границы расплава, условия теплообмена и диффузию примесей в окрестности фронта кристаллизации. Установлено, что в условиях микротурбулентного квазистационарного поля в расплаве происходит разрушение крупномасштабных конвективных структур.

Экспериментально показано, что тепловое и концентрационное поля в окрестности межфазной границы отличаются с одной стороны низким уровнем осцилляций температуры и примесных концентраций на фронте кристаллизации, с другой – высокими

значениями коэффициента тепло- и массопереноса в расплаве, что совместно обеспечивает условия для кинетического механизма роста межфазной поверхности.

Эффективные коэффициенты диффузии примесей и теплопроводности могут возрастать в несколько раз. В этих условиях становится возможным эффективно использовать вибрационные поля для регулирования транспорта примесей и тепловых потоков к межфазной границе.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 97-01-00138).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гершуни Г.З., Жуховицкий Е.М. Устойчивость конвективного течения в вибрационном поле относительно пространственных возмущений // Изв. АН СССР. МЖГ. 1988. № 2. С. 116–122.
2. Сираев Р.Р. Вибрационная тепловая конвекция около однородно нагретого цилиндра // Изв. АН СССР. МЖГ. 1989. № 3. С. 23–26.
3. Козлов В.Г. О вибрационной тепловой конвекции в полости, совершающей высокочастотные вращательные движения // Изв. АН СССР. МЖГ. 1988. № 3. С. 138–144.
4. Briskman V.A. Vibrational thermocapillary convection and stability // Proc. 1st Intern. Symp. on Hydromech. and Heat/Mass Transfer in Microgravity, Perm; Moscow, 1991. Amsterdam: Gordon and Breach, 1992. P. 111–119.
5. Бирюх Р.В. О вибрационной конвекции в плоском слое с продольным градиентом температуры // Изв. АН СССР. МЖГ. 1990. № 4. С. 12–15.
6. Lyubimov D.V. A new approach in the vibrational convection theory // C.r., Acad. Sci. Paris. Ser. Ib. 1995. V. 320. № 6. P. 271–275.
7. Филин Е.М., Юречко В.Н. Экспериментальное исследование виброконвекции методом фотохромной визуализации // Изв. АН СССР. МЖГ. 1993. № 6. С. 81–87.
8. Uspenskii V., Favier J.J. High frequency vibration and natural convection in Bridgman-scheme crystal growth // Intern. J. Heat and Mass Transfer. 1994. V. 37. № 4. P. 691–698.
9. Бармин И.В., Земсков В.С., Раухман М.Р. и др. Тепло- и массоперенос в расплаве при кристаллизации антимоноида индия в невесомости // Гидромеханика и тепло- массообмен в невесомости / Под ред. В.С. Авдеевского, В.И. Полежаева. М.: Наука, 1982. С. 209–219.
10. Uspenskii V. On the influence of high-frequency inhomogeneous vibration on the free surface of a melt // BRAS Phys. Supplement: Phys. Vibrat. 1995. V. 59. № 1. P. 53–59.
11. Miles J., Henderson D. Parametrically forced surface waves // Annu. Rev. Fluid Mech. 1990. V. 22. P. 143–165.
12. Sommeria J. Experimental study of the two-dimensional inverse energy cascade in a square box // J. Fluid Mech. 1986. V. 170. P. 139–168.
13. Moreau R. Magneto-hydrodynamics. Dordrecht: Kluwer, 1990. 426 p.
14. Чернов А.А., Гиваргизов Е.И., Багдасаров Х.С. и др. Современная кристаллография. Т. 3. М.: Наука, 1980, 407 с.
15. Polezhaev V.I. Convective Processes in microgravity // Proc. 1st Intern. Symp. on Heat/Mass Transfer in Microgravity. Perm; Moscow, 1991. P. 15–24, Amsterdam: Gordon and Breach, 1992.
16. Robert R., Sommeria J. Statistical equilibrium states for two-dimensional flows // J. Fluid Mech. 1991. V. 229. P. 291–310.
17. Хрипченко С.Ю. Генерация крупномасштабных вихревых структур в плоском слое мелкомасштабной спиральной турбулентностью // Магнит. гидродинам. 1991. № 4. С. 77–92.
18. Gioni S., Ciliberto S., Sommeria J. Strongly turbulent Rayleigh – Benard convection in mercury: comparison with results at moderate Prandtl number // J. Fluid Mech. 1997. V. 335. P. 111–140.
19. Alhoussiere T., Uspenski V., Kljukin A., Moreau R. An experimental investigation of quasi-2D turbulence with or without buoyancy effects // Proc. IUTAM Symp. Variable Density Low Speed Turbulent Flows. France, Marseille, 1996. P. 121–125.