Національна академія наук України ІНСТИТУТ МЕТАЛОФІЗИКИ ІМ. Г.В. КУРДЮМОВА (ІМФ ім. Г.В. Курдюмова НАН України) 03680, ДСП, г.Київ-142, бульв. Вернадського, 36 тел. (044) 424-10-05, metal@imp.kiev.ua

"ЗАТВЕРДЖУЮ"

Директор ІМФ ім. Г.В. Курдюмова НАН України академік НАН України

О.М. Івасишин

«____» ____ 2015 p.

3 B I T

ПРО ВИКОНАННЯ НАУКОВИХ ДОСЛІДЖЕНЬ

«Вивчення процесу направленої кристалізації методами прямого спостереження за еволюцією фазової границі прозорих речовин в умовах мікрогравітації та накладення контрольованих вібраційних впливів»

(«Морфос-В»).

Етап № 4. Наземне відпрацювання космічного експерименту - вивчення еволюції мікро- та макроструктури фронту кристалізації при вирощуванні кристалів сукцинонітрилу в умовах вібровпливу поблизу втрати стійкості плоского фронту.

Науковий керівник проекту науковий співробітник кандидат фіз.-мат. наук

С.Л. Живолуб

Термін виконання: 27.02.2015 р. – 30.12.2015 р.

СПИСОК ВИКОНАВЦІВ

Керівник НДДКР науковий співробітник кандидат фіз.-мат. наук Є.Л. Живолуб(реферат, розділ 1, 2)

Відповідальний виконавець: науковий співробітник, кандидат фіз.-мат. наук

30.12.2015 p.

30.12.2015 p.

Провідний науковий співробітник, доктор фіз.-мат. наук

(вступ, висновки, розділ 2)

І.К. Євлаш

(розділ 1, 2)

О.П. Федоров

30.12.2015 p.

2

ΡΕΦΕΡΑΤ

Звіт по НДДКР: 46 стор., 2 таблиці, 13 рисунків.

Об'єкт дослідження – прозора органічна речовина сукцинонітрил, яка моделює процеси кристалізації металічних матеріалів і є найбільш придатною для вивчення твердіння в космічних умовах.

Мета роботи – розроблення методичних основ введення низькочастотних вібрацій при спрямованому твердінні методом Бриджмена для підготовки відповідного космічного експерименту.

На звітному етапі проводилось доопрацювання вузлів та систем для введення низькочастотних вібрацій в розплав, що твердіє, та проведення тестових експериментів для вивчення основних морфологічних ефектів вібраційного впливу.

Проведені методичні роботи дозволили забезпечити вивчення процесу кристалізації за умов введення низькочастотних вібрацій в діапазоні амплітуд... та частот... в циліндричний дослідний зразок. Експериментально доведено, що морфологічні зміни внаслідок введення вібрацій пов'язані з рухом розплаву перед фронтом та суттєвої зміни рушійної сили кристалізації. Зазначений діапазон вібрацій відповідає зокрема підвищенню швидкості вирощування у 5 разів.

Одержані експериментальні результати закладають основу для подальших а детального вивчення впливу аксіальної вібрації на окремі характерні морфологічні типи фронту кристалізації, а також відкривають можливості різних технологічних впроваджень як для земних так і космічних технологічних процесів.

СПРЯМОВАНА КРИСТАЛІЗАЦІЯ, СУКЦИНОНІТРИЛ, ГРАНИЦЯ РОЗДІЛУ КРИСТАЛ–РОЗПЛАВ, НИЗЬКОЧАСТОТНА ВІБРАЦІЯ.

3 M I C T

Вступ			
1 Доопрацювання вузла введення низькочастотних вібрацій у циліндричний зразок, систем градієнтного пристрою та переміщення зразка макету установки для вирощування кристалів при спрямованому твердіння органічних модельних речовин методом Бриджмена.	8		
1.1 Доопрацювання вузла низькочастотної вібрації для впливу на розплав в циліндричному зразку установки для вирощування кристалів методом Бриджмена.	8		
1.2 Доопрацювання систем градієнтного пристрою та переміщення зразка макету установки для вирощування кристалів методом Бриджмена.	12		
2 Вивчення еволюції мікро- та макроструктури фронту кристалізації при			
вирощуванні кристалів сукцинонітрилу в умовах вібраційного впливу			
поблизу втрати стійкості плоского фронту.	17		
2.1 Проведення тестових процесів спрямованого твердіння сукцинонітрилу без накладання низькочастотного впливу на розплав, що твердіє	18		
2.1.1 Виготовлення дослідного об'ємного циліндричного зразка.	18		
2.1.2 Отримання об'ємного дослідного зразка сукцинонітрилу кристалографічної орієнтації <100>.	20		
2.1.3 Проведення тестових експериментів з направленого твердіння сукцинонітрилу без накладання низькочастотного впливу на розплав, що твердіє.	21		
2.2. Вивчення еволюції мікро- та макроструктури фронту кристалізації при вирощуванні кристалів сукцинонітрилу в умовах вібраційного впливу поблизу втрати стійкості плоского фронту.	27		
Висновки	43		
Посилання	45		

вступ

На попередніх етапах роботи встановлено, що низькочастотна вібрація може бути дієвим засобом впливу на структуру фронту кристалізації, а отже і на властивості кристалічного матеріалу, який одержується методами спрямованого твердіння [1]. Крім того, встановлені важливі перспективи такого підходу і також проблеми, які необхідно вирішити на шляху до здійснення орбітального експерименту [2,3].

Метод Бриджмена є найбільш поширеним в пошуках нових космічних технологій одержання матеріалів завдяки простоті технічної реалізації в космосі. Відомо однак, що неконтрольована вібрація (так званий фактор j-jitter) суттєво спотворює бажані умови експерименту і стоїть на шляху технологічного його використання в перспективних орбітальних установках [4,5]. Отже стоїть проблема організації такого зовнішнього вібраційного впливу, який би зменшив неконтрольований вплив і слугував інструментом регулювання структурою твердіння. На сьогодні слід вважати встановленими наступні ефекти:

- низькочастотна вібрація суттєвим чином може змінювати теплові та концентраційні поля біля фронту кристалізації та критичним чином впливати на морфологію фронту та мікросегрегаційну структуру матеріалу;
- аксіальні вібраційні коливання в земних умовах можуть у випадку метода Бриджмена придушувати небажані нестаціонарні потоки перед фронтом і слугувати методом поліпшення структури та властивостей кристалів, що вирощуються на землі.
- в невагомості неконтрольовані вібрації (частотою до 100Гц) можуть викликати в розплаві нестійкість потоку типу Релея-Бенара та суттєвим чином спотворювати якість кристалічного матеріалу.

Причому такий ефект характерний саме для методу Бриджмена і відсутній для методу плаваючої зони.

Отже повстає принципове питання щодо можливості ефективного використання методу Бриджмена в космосі. Позитивна відповідь на це питання має включати реалізацію методики зовнішнього вібраційного впливу. Який би придушив неконтрольовані збурення.

На попередньому етапі роботи знайдене принципове оптимальне рішення, щодо створення керованого потоку розплаву поблизу фронту внаслідок аксіальних вібрацій. Такий вплив не змінює глобальний контур перемішування розплаву в зразку (це небажано, оскільки зменшується градієнт температури). В той ж час вібрація суттєво впливає на температурно-концентраційні умови перед фронтом [6,7].

Отже наступний крок полягає у доопрацюванні знайдених інженерних рішень, забезпеченні широкого інтервалу параметрів вібрації, доведенні факту впливу на фронт в процесі вирощування та експериментальній оцінці величини такого впливу. Самі ці завдання вирішувались у даній роботі. Крім того, роботи, відображені у цьому звіті, підтримуються також математичним моделюванням та аналітичними розрахунками проблеми спрямованого твердіння, які виконуються в рамках інших наукових проектів. 1 ДООПРАЦЮВАННЯ ВУЗЛА НИЗЬКОЧАСТОТНИХ ВІБРАЦІЙ, СИСТЕМ ГРАДІЄНТНОГО ПРИСТРОЮ ТА ПЕРЕМІЩЕННЯ УСТАНОВКИ ДЛЯ ВИРОЩУВАННЯ КРИСТАЛІВ МЕТОДОМ БРИДЖМЕНА.

При доопрацюванні вузла низькочастотної вібрацій, систем градієнтного пристрою та переміщення зразка макету установки для вирощування кристалів органічних модельних речовин методом Бриджмена конструктивна схема експериментальної установки та принципові рішення, які були розроблені на попередніх етапах, були в основному збережені. Основна увага приділена внесенню змін у технічні рішення за результатами лабораторних випробувань макету установки.

1.1 Доопрацювання вузла низькочастотної вібрації для впливу на розплав в циліндричному зразку установки для вирощування кристалів методом Бриджмена.

При доопрацюванні вузла низькочастотної вібрації виходили з необхідності розширення функціональних можливостей апаратури. Зокрема, важливим моментом є введення низькочастотних коливань у шар розплаву, який прилягає до фронту кристалізації, оскільки саму цей шар є відповідальним за структуроутворення. Розрахунки інтенсивності потоків є дуже складним завданням, тому в даній роботі розрахункові дані слугували орієнтиром, а виготовлення вузла здійснювали методом послідовних наближень на основі експериментальних напрацювань.

На рисунку 1.1 приведено схему вузла низькочастотної вібрації для впливу на розплав в циліндричному зразку. Вузол складається з фіксатора в якому, через фторопластову прокладку з отвором, за допомогою кріпильних гвинтів (рисунок 1.2) кріпиться досліджуваний зразок. Фіксатор жорстко з'єднано з трубчатою направляючою, вставленою через фторопластову прокладку в циліндричний отвір в рухомій платформі блоку переміщення лабораторного макету установки. Нижнім своїм кінцем трубчата направляюча спирається на ексцентрик, який насаджено на робочу вісь електродвигуна постійного струму, який, в свою чергу, жорстко з'єднано з рухомою платформою. У внутрішній частині трубчатої направляючої розташовано світловий діод, який виконує функцію освітлення межі розділу фаз. Нижню частину трубчатої направляючої закрито за допомогою скляної заглушки, через яку здійснюється контакт направляючої з ексцентриком.

В процесі опрацювання пристрою низькочастотної вібрації було виготовлено необхідні вузли (вузол створення вібраційного впливу, вузол освітлення дослідного зразка) та деталі, необхідні для інтеграції вібраційного пристрою до макету кристалізаційної установки.

Вібраційний пристрій було інтегровано до лабораторного макету кристалізаційної польотної установки та проведено його тестові випрбування.

Вузол вібраційного впливу забезпечує наступні параметри синусоїдального віброприскорення контейнеру:

- частота в діапазоні від 5 до 40 Гц,
- амплітуда в діапазоні від 0,1 до 11 g.



Рисунок 1.1 - Схема вузла низькочастотної вібрації для впливу на розплав в

циліндричному зразку



Рисунок 1.2 - Схема трубчатої направляючої вузла низькочастотної вібрації для впливу на розплав в циліндричному зразку.

1.2 Доопрацювання систем градієнтного пристрою та переміщення зразка макету установки для вирощування кристалів методом Бриджмена.

У відповідності з планом робіт, згідно технічного завдання, доопрацьовано систему градієнтного пристрою та переміщення зразка макету польотної установки для вирощування кристалів методом Бриджмена (рисунок 1.3).

Нагрівач, що призначено для створення зони розплаву у зразку є прямокутний алюмінієвий стрижень з центральнім отвором, який на 0,2 мм перевищує діаметр зразка. По двом протилежним граням по всій його довжині розташовані термоелектричні модулі (елементи Пельт'є) гарячий спай яких повернутий в бік нагрівача.

Під нагрівачем на відстані 10 мм встановлено холодильник, призначений для створення необхідного температурного градієнту у зразку. Холодильник є прямокутним алюмінієвим стрижнем з центральнім отвором, аналогічним нагрівачу. По двом протилежним граням розташовані термоелектричні модулі, холодний спай яких повернутий в бік холодильника, а гарячий – до радіатора.

Між нагрівачем та холодильником знаходиться температурна зона, в який проходить формування фазової межі модельної речовини в зразку.

Доопрацювання градієнтного пристрою лабораторного макету польотної кристалізаційної установки проводилось з метою забезпечення оптимального робочого теплового режиму в процесі вирощування монокристалів.



Рисунок 1.3 – Макет установки для вирощування кристалів методом Бриджмена.

З метою зменшення потоку тепла від нагрівача до холодильника і далі до відсіку нижньої камери, була розроблена розрізна конструкція зовнішніх кришок несущих стойок корпусу з теплоізолюючими кожуха зазорами та та теплоізолюючими прокладками між верхньою та нижньою частинами градієнтного пристрою Розроблена конструкція та корпусу. забезпечує теплоізоляцію зразка від впливу температури кожуху і контроль температури в нижньої зоні поблизу зразка.

Система градієнтного пристрою забезпечує наступні параметри теплового режиму макету установки для вирощування кристалів методом Бриджмена:

Таблиця 1.

Діапазон регульованих температур нагрівача, ° С 40…100 Діапазон регульованих температур основного холодильника, ° С 0…20 Дискретність завдання температур холодильника і нагрівача, не більше, ° С 0,5 Оціночне значення довготермінової нестабільності підтримання температур холодильника і нагрівача, не більше, ° С ± 0,05

Систему переміщення призначено для реалізації переміщення із заданою швидкістю зразка відносно градієнтного пристрою в процесі вирощування кристала і вона складається з:

- двигуна з редуктором;

- кульково-гвинтової передачі;

- каретки;

- направляючої.

Привід складається з крокового двигуна, гумового амортизатора і блоку шестерень. Обертання осі двигуна передається через проміжну шестерню на кулькова-гвинтову передачу, що перетворює обертальний рух в поступальний.

Направляюча - це оброблена з високою точністю циліндрична стойка, призначена для уникнення радіальних зміщень каретки. Зупинка каретки в крайніх положеннях робиться по сигналах від двох кінцевих мікроперемикачів.

конструкції лінійного приводу Доопрацювання переміщення зразка зводилась до наступного. Звичайна ходова пара гвинт – гайка змінено на кулькову – гвинтову, яка має більш високі характеристики по точності, люфтам, тертю (к.к.д.), плавності ходу та зносостійкості. Таку заміну було зроблено на основі досвіду експлуатації прототипу робочого блоку. Завдяки такому доопрацюванню значно підвищується точність центрування зразка та стабільність його положення в каналі градієнтного пристрою в усьому діапазоні переміщення дослідного зразка в процесі кристалізації.

Система переміщення зразка забезпечує наступні параметри протягування контейнеру:

Таблиця 2.

Швидкість переміщення зразка:

-	в установочному режимі, не менше, мм/с	1
_	в робочих режимах діапазон, не менше, мкм/с	0,1 30

15

Дискретність завдання робочої швидкості зразка, не більше,

мкм/с	0,1
Оціночне значення довготривалої нестабільності підтримання	
середньої швидкості зразка, не більше, %	± 1

2 ВИВЧЕННЯ ЕВОЛЮЦІЇ МІКРО- ТА МАКРОСТРУКТУРИ ФРОНТУ КРИСТАЛІЗАЦІЇ ПРИ ВИРОЩУВАННІ КРИСТАЛІВ СУКЦИНОНІТРИЛУ В УМОВАХ ВІБРОВПЛИВУ

Проводились експериментальні дослідження впливу низькочастотної вібрації на розподіл температури і рух розплаву перед фронтом кристалізації безпосередньо в процесі вирощування об'ємних монокристалів сукцинонітрилу шляхом прямого спостереження за еволюцією морфології поверхні розділу фаз, що є необхідним базисом для підготовки проведення космічного експерименту в умовах мікрогравітації.

Дослідження проводилися за спеціально розробленою методикою, яка дозволяла відстежити характер та динаміку впливу низькочастотної вібрації на стан фазової межі в умовах різних послідовних ступенів розвитку її морфологічної структури. Параметри процесу твердіння та вібраційного впливу (частота – 11 Гц, амплітуда – 1,25 мм) було підібрано таким чином, щоб з високою надійністю зафіксувати стадію розвитку морфології фазової межі, на якій досліджувались безпосередні результати вібровпливу та їх подальша еволюція. Відповідно до цих вимог обрано таку схема експерименту, при якій низькочастотні коливання певної частоти, амплітуди та тривалості накладались на фазову межу, що знаходилася в строго фіксованому морфологічному стані. Дослідження проводилися з використанням лабораторного макету польотної установки з блоком збудження низькочастотних коливань, який задовольняє 2.1 Проведення тестових експериментів зі спрямованого твердіння сукцинонітрилу без накладання низькочастотного впливу на розплав, що твердіє.

2.1.1 Виготовлення дослідного об'ємного циліндричного зразка.

З метою проведення тестових дослідів процесів спрямованого твердіння сукцинонітрилу без накладання низькочастотного впливу на розплав, що твердіє, було виготовлено дослідний об'ємний циліндричний зразок (рис. 2.1).

Конструктивні параметри об'ємного зразка визначались параметрами лабораторного макету польотної кристалізаційної установки. Функціонально об'ємний зразок складається з трьох умовних частин:

- циліндричної скляної кювети з модельною речовиною;

- нижньої заглушки-фіксатора;
- об'ємного компенсатора.

Циліндрична скляна кювета довжиною ~140,0 мм, зовнішнім діаметром 12,9 мм та внутрішнім діаметром 10,3 мм, яка мала з одного кінця загострену форму, заповнювалась дослідною прозорою органічною модельною сукцинонітрилом. Після отримання монокристалу речовиною певної кристалографічної орієнтації, загострена відрізалась і частина зразок закупорювався з нижньої сторони прозорою скляною заглушкою, а з верхньої – фторопластовою, що містила в собі світловод. Нижня вклеєна прозора скляна заглушка, з одного боку, ізолює досліджувану речовину від контакту з



Рис. 2.1 - Схема дослідного об'ємного циліндричного зразка.

оточуючим середовищем, а, з другого, не заважає прямому проходженню світла від освітлювача. Внутрішня поверхня скляної пробки щільно контактує з заздалегідь обробленою твердою поверхнею модельної речовини.

В верхньої частині зразка фторопластова заглушка з світловодом та корпус ампули разом створюють вузол компенсації об'єму розплаву, який, у той же самий час, забезпечує можливість спостереження фазової межі кристал – розплав.

2.1.2 Отримання об'ємного дослідного зразка сукцинонітрилу кристалографічної орієнтації <100>.

Отримання зразка певної кристалографічної орієнтації виконувалось шляхом проведення процесу зароджування твердої фази при спрямованому твердінні досліджуваної речовини у загостреної нижній частині скляної ампули зразка і базувалось на тому факті, що кристалографічний напрямок <100> є для сукцинонітрилу напрямком переважного росту. Завдяки цьому, зародковий кристал, що виникає в загостреної частині скляної ампули при спрямованому твердінні, як правило, орієнтовано таким чином, що кристалографічний напрямок <100>, з тим, чи іншім відхиленням, спрямовано вздовж напрямку тепловідводу, тобто вздовж вертикальної осі зразка. Процес спрямованого твердіння, ініціюючий виникнення зародкового кристалу, проводився з достатньо великою кристалізації, швидкістю сприяло більш ймовірному що також збігу кристалографічного напрямку <100> твердої фази з напрямком вертикальної осі зразка. Контроль кристалографічної орієнтації отриманої монокристалічної твердої фази здійснювався шляхом співставлення напрямку дендритних гілок

(<100>) з напрямком вертикальної осі зразка. У випадку незадовільного збігу, процес спрямованого твердіння повторювався. У разі отримання задовільно орієнованого зародкового кристалу, процес розрощування монокристалу на весь зразок проводився з малою швидкістю твердіння, маючи на меті отримання досконалого монокристалу.

Більш детально процедура отримання монокристалів модельної речовини з бажаною кристалографічною орієнтацією міститься в звіті «Про виконання наукових досліджень «Вивчення процесу направленої кристалізації методами прямого спостереження за еволюцією фазової границі прозорих речовин в умовах мікрогравітації та накладення контрольованих вібраційних впливів» за 2012 рік [8].

2.1.3 Проведення тестових дослідів спрямованого твердіння сукцинонітрилу без накладання низькочастотного впливу на розплав, що твердіє.

З метою визначення часових границь існування кожної з характерних послідовних морфологічних особливостей будови фазової межі кристал – розплав було проведено тестові досліди зі спрямованого твердіння сукцинонітрилу без накладання низькочастотного впливу на розплав, що твердіє в циліндричному зразку, з використанням лабораторного польотного макету установки для вирощування кристалів за методом Бриджмена.

Зазначені тестові експерименти проводились в автоматизованому режимі під керуванням спеціальної комп'ютерної програми, яка задавала і підтримувала всі

основні параметри сеансу процесу спрямованого твердіння за схемою, яка представлена на рисунку 2.2.

На попередньому етапі дослідний зразок закріплявся в спеціальному тримачі системи переміщення зразка і встановлювався у крайнє нижнє положення «**Низ0**» (рисунок 2.2) по за межами градієнтного пристрою.

На наступному етапі вмикалось живлення нагрівача та холодильника і протягом 1,5 години їх температури досягали заданих значень і стабілізувались. Процес виходу на завдані температурні параметри контролювався внутрішніми термопарами і відображався на екрані за допомогою комп'ютерної програми керування установки.

Під час етапу «а» (рисунок 2.2) зразок с заданою швидкістю переміщався в градієнтний пристрій в початкове робоче положення «**Bepx 100**» (рисунок 2.2). Необхідність такої схеми оплавлення дослідного зразка в процесі поступового його введення в гарячу зону обумовлювалась вимогами щодо запобігання руйнуванню твердої частини зразка, яка задає кристалографічну орієнтацію кристалу.

На етапі «**b**» (рисунок 2.2) зразок в начальному робочому положенні «**Bepx 100**» протягом години витримувався з метою стабілізації просторового положення та морфології границі розділу кристал – розплав. Процес стабілізації стану фазової межі контролювався візуально за



Рисунок 2.2 – Циклограма процесу вирощування монокристалів.

- **a** установка зразка в початкове положення $t_{\text{нагр}} = +60...+100 \text{ °C}, t_{\text{хол}} = 0...+20 \text{ °C}, \text{ час } \mathbf{a} = 30...60 \text{ мін}.$
- b вихід нагрівача и охолоджувача на заданий режим, перехід речовини зразка в зоні нагрівача із твердої фази в рідку

 $t_{\text{нагр}} = +60...+100$ °C, $t_{\text{хол}} = 0...+20$ °C, час **b** = 30...60 мін.

- **с** підготовча фаза вирощування кристалів с малою швидкістю $t_{\text{нагр}} = +60...+100 \text{ °C}, t_{\text{хол}} = 0...+10 \text{ °C}, \text{ час } \mathbf{c} = 30...60 \text{ мін}.$
- **d** основна фаза вирощування кристалів з робочою швидкістю, відеорегістрація $t_{\text{нагр}} = +60...+100 \text{ °C}, t_{\text{хол}} = 0...+10 \text{ °C}, час$ **d**= 3...15 годин.
- **f** початкове положення для початку нового циклу та зміни зразка $t_{xon} = 0...+10$ °C, час **c** = 30...60 мін.

допомогою відеокамери на телевізійному моніторі.

На наступному етапі «с» (рисунок 2.2) починався процес вирощування кристалу з малою (0,6 мкм/секунду) швидкістю протягом 5/6 години. Необхідність такого підготовчого етапу в процесі росту також обумовлювалась вимогами к запобіганню руйнуванню твердої частини зразка, що задавала кристалографічну орієнтацію кристалу, що вирощується.

На етапі «**d**» (рисунок 2.2) вирощування кристалу проводиться з заданою швидкістю в умовах візуального контролю процесу за допомогою відеокамери на телевізійному моніторі та фіксації відеозображення на зовнішньому носії відеоінформації.

Етап «**f**» (рисунок 2.2) призначено для можливої заміни дослідного зразка та підготовки нового сеансу вирощування.

В результаті проведення тестових дослідів зі спрямованого твердіння було отримано еталонні зразки морфології границі розділу фаз кристал – розплав (рисунок 2.3) та визначені відносні тривалості існування морфологічної послідовності: плоского фронту, нодної структури та структури комірок. Ці дані дозволили визначити параметри процесу вирощування та інтервали часу в яких на подальшому етапі найбільш ефективно прикладати низькочастотну вібрацію з метою вивчення її впливу на стійкість фазової межі та особливості реакції перелічених вище еталонних структур на вібраційне збудження.





Рисунок 2.3 – Еволюція морфології границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 1,4 мкм/с без впливу дії низькочастотної вібрації.

2.2. Вивчення еволюції мікро- та макроструктури фронту кристалізації при вирощуванні кристалів сукцинонітрилу в умовах вібраційного впливу поблизу втрати стійкості плоского фронту.

Експериментальні дослідження впливу низькочастотної вібрації на мікро-та макроструктуру фронту кристалізації проводилися, як і на попередніх етапах дійсного комплексу досліджень, на органічній модельній прозорій речовинісукцинонітрилі - промислової чистоти фірми "Aldrich" (Succinonitrile, product number 160962), який детально вивчався раніше і дозволяє проводити прямі спостереження за фронтом кристалізації в строго контрольованих умовах.

Дослідний зразок поміщався лабораторний В макет польотної кристалізаційної установки, та запускався автоматичний процес вирощування монокристалу кристалографічної орієнтації <100>. Спостереження за положенням фазової межі і її морфологією проводилось за допомогою відеокамери з виведенням зображення на монітор з одночасним збереженням відеоінформації на аналоговому носії. Температура нагрівача становила 80°C, у холодильнику підтримувалась температура 15°С. Точність підтримки температури нагрівача та холодильнику становила ± 0.5 К. При таких параметрах теплового режиму, висота стовпа розплаву в вихідному стартовому положенні складала 45 мм, а висота долі кристалічної фази становила 77 мм. Величина градієнта температури G на фронті кристалізації складала 30 ^оС/см. Швидкість вирощування монокристалу становила на етапі «**d**» (рисунок 2.2) значення 1,4 мкм/сек.

При таких параметрах вирощування монокристалу, тривалість існування

морфології плоскої поверхні розділу кристал-розплав до появи перших ознак фронтом кристалізації стійкості втрати знаходилась В межах 120 – 150 хвилин. Тривалість етапу існування нодної структури від початку її виникнення до трансформації в структуру гексагональних комірок, становила, ~ 60 – 80 хвилин. У подальшому спостерігалась структура розвинених комірок з її переходом в останній третині тіла монокристалу до комірково-дендритної структури. На рисунку 2.3 представлено таку послідовність зміни морфології розділу процесі тестового границі фаз В вирощування монокристалу сукцинонітрилу.

Надалі, система кристал – розплав, що знаходилась в процесі росту, на певному часовому інтервалі піддавалась дії низькочастотних коливань із заданими параметрами частоти, амплітуди і тривалості. Тривалість вібраційного впливу на основному етапі досліджень складала 60 секунд. Після зняття вібраційного збудження досліджуваний зразок поверталася в початкове положення, і проводилась фіксація (як безперервна відео, так і візуальна) процесу зміни морфологічного стану поверхні розділу рідкої і твердої фаз в досліджуваному зразку.

Дія низькочастотних коливань на систему кристал – розплав в процесі вирощування монокристалу сукцинонітрилу здійснювалась на наступних етапах:

- етапі існування плоскої поверхні розділу фаз;
- етапі існування нодної морфології поверхні розділу фаз;
- етапі існування коміркової морфології поверхні розділу фаз.

28

Рисунок 2.4 ілюструє результати низькочастотного впливу на фронт кристалізації при рості монокристалу на етапі збереження плоскої поверхні розділу фаз.

Початково плоска поверхня розділу фаз (рисунок 2.4, а) відразу після зняття вібраційної дії демонструє стійкості певні ознаки прояви втрати (рисунок 2.4, б), які виражаються в значному збільшенні товщини та контрасту («набуханні») малокутових субграниць, а також, в появі на периферії поверхні новоутворень симетричної форми. З часом, кількість таких «висипань» значно збільшується так, що вони покривають всю поверхню границі розділу кристал – розплав (рисунки 2.4, в, г). Крім того, певна їх частина вибудовується в малокутових субграниць, слідуючи індивідуальним «ланцюжки» вздовж геометричним особливостям їх форми.

Необхідно зазначити, що явище «набухання» малокутових субграниць є характерною ознакою, яка регулярно спостерігається в умовах накопичення домішок попереду фронту кристалізації безпосередньо перед втратою ΪM стійкості. Що ж до виникнення і поширення, так званих, «висипань», то це явище дуже добре корелює з результатами експериментального визначення часового порогу втрати стійкості нерухомою фазовою межею при дії на систему кристал розплав низькочастотної вібрації, яка полягала в виникненні і розвитку на плоскій поверхні розділу, комплексу мікродендритів, що проростали В розплав. А після вібраційної дiï, спостерігався процес релаксації морфології ЗНЯТТЯ фазової межі, який полягав в оплавленні дендритів і поверненні фазової межі до форми плоскої поверхні. Однак, в цьому випадку процес релаксації займав значно менший проміжок часу, що лежав в інтервалі 120 - 180 секунд [9]





Рисунок 2.4 – Еволюція морфології границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 1,4 мкм/сек. Вплив низькочастотної вібрації здійснено на стадії існування плоскої фазової границі.

В процесі подальшого росту монокристалу морфологія фазової границі зазнає подальших змін і трансформується в стандартну коміркову структуру, що добре просліджується при порівнянні зображень, що приведено на рисунку 2.3, д та рисунку 2.4, д.

Подальші спостереження за еволюцією морфології фазової межі виявили, в певної мірі, неочікувану її подальшу трансформацію. Здійснюється поступове зникнення добре розвиненої коміркової структури і повернення морфологічної будови границі розділу фаз до морфології плоского фронту кристалізації (рисунок 2.4, е –ж).

На наступному етапі дослідження, дія вібраційного впливу здійснювалась на нодній стадії морфологічної будови границі розділу фаз в процесі росту монокристалу сукцинонітрилу (рисунок 2.5).

Як і у попередньому випадку, після зняття вібровпливу фазова границя вкривалась «лісом» мікродендритів (рисунок 2.5, б, в), які в процесі подальшого росту поступово трансформувались в стандартну коміркову структуру. Згодом, також, як і в попередньому випадку, відбувалось поступове зникнення добре розвиненої коміркової структури і повернення морфологічної будови границі розділу фаз до стану плоскої поверхні фронту кристалізації (рисунок 2.5, г – е). Зробимо наголос на тому, що релаксація відбувається не до стадії вихідної нодної структури фронту кристалізації, а до її попереднього етапу – плоского фронту, що випливає з порівняння рисунків 2.5, а та 2.5, е.





Рисунок 2.5 - Морфології границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 1,4 мкм/с Вплив низькочастотної вібрації здійснено на стадії існування нодної структури фазової границі.

Наступним етапом накладання вібраційного впливу на монокристал, що росте, був етап розвинутої коміркової структури. Результати такого впливу представлено на рисунку 2.6.

Після прикладення вібраційного впливу поверхня коміркового фронту вкривається «лісом» мікродендритів і певний час вони є домінуючими структурними елементами поверхні розділу фаз тверде тіло – рідина. З часом, процеси релаксації, що включаються з моменту зняття фактора збурення, приводять до поступового «відновлення» коміркової структури, практично тотожної вихідної (рисунки 2.6 а і е).

Важлива інформація витікає з співставлення результатіввивчення еволюції мікро- та макроструктури фронту кристалізації при вирощуванні об'ємних кристалів сукцинонітрилу в умовах вібровпливу з таким нашим дослідженням, що було проведено в квазідвовимірному зразку.

У випадку квазідвовимірного зразка накладання впливу низькочастотної вібрації в широкому спектрі частоти і амплітуди на монокристал, що росте, не приводило к помітним змінам мікро- та макроструктури фазової межі. Такий результат було отримано при дії вібраційного впливу, як на етапі існування плоского фронту кристалізації, так і на етапах нодної та коміркової структур поверхні розділу фаз. Відсутність реакції досліджуваного об'єкту може бути пов'язано з тією обставиною, що в квазідвовимірному зразку відсутнім є



Рисунок 2.6 – Еволюція морфології границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 1,4 мкм/с Вплив низькочастотної вібрації здійснено на стадії існування коміркової структури фазової границі.

рух розплаву у вигляді конвекційних потоків в рідкої фазі системи кристал – розплав. Ще одним аргументом на користь такого припущення можуть бути розглянуто результати спостереження за інтенсивністю і напрямком руху рідини в тонкому прифронтовому шарі розплаву. Дослідження проводилось шляхом спостереження за напрямком та швидкістю руху мікрочастинок - маркерів, яких було свідомо введено в розплав. Без дії вібрації рух частинок мав стаціонарний характер, як за кількістю частинок, що одноразово знаходились у полі зору, так за швидкістю і напрямком їх руху. При накладанні вібрації, у перший момент після його зняття, спостерігалась наявність у полі зору на порядок більшої кількостічастинок – маркерів. Вже протягом кількох наступних секунд картина відновлювалась до попереднього стаціонарного стану, що є однозначним свідоцтвом впливу низькочастотних коливань на характер руху розплаву поблизу поверхні фронту кристалізації.

Крім того, було проведено дослідження щодо впливу позиції області здійснення низькочастотних коливань по відношенню до рівноважної ізотерми Т = T_p – температури співіснування рідкої та твердої фаз, на ефективність та характер впливу коливань на морфологію фазової межі. На рисунку 2.7 представлено три таких області здійснення процесу коливань:

а – коливання здійснюються при температурах вищих за рівноважну;

б - коливання здійснюються при температурах нижчих за рівноважну;

в - коливання здійснюються при температурах що мають рівноважну

температуру за середню точку.

Дослідження показали, що помітного впливу на результати вібраційної дії



Рисунок 2.7 – Можливі області здійснення низькочастотних коливань по відношенню до рівноважної ізотерми T = T_p – температури співіснування рідкої та твердої фаз.



Рисунок 2.8 - Морфологія границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 2,8 мкм/с без впливу дії низькочастотної вібрації.



Рисунок 2.9 - Морфологія границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 4,2 мкм/с без впливу дії низькочастотної вібрації.



Рисунок 2.10 - Морфології границі розділу фаз кристал – розплав в монокристалі сукцинонітрилу, що вирощено зі швидкістю 7,0 мкм/сек. без впливу дії низькочастотної вібрації.

така зміна позиції області здійснення процесу коливань не викликає і є другорядним, фактором, порівняно зі зміною конфігурації та інтенсивності конвекційних потоків в рідкої фазі.

Важливою, на наш погляд, була спроба визначення відносного значення рушійної сили (наприклад швидкості росту кристалу), який можна співставити з вібрацією.

На рисунках 2.8 – 2.10 приведено послідовності зміни морфології фазової межі монокристалів сукцинонітрилу, що було вирощено з швидкостями твердіння 2,8 мкм/сек., 4,2 мкм/сек. та 7,0 мкм/сек. без дії низькочастотного вібровпливу. Співставлення отриманих структурних послідовностей з даними по структурам, що виникали під дією вібрації показало співпадіння структур, що відповідають швидкості росту кристалу 7,0 мкм/сек. Таким чином, дія низькочастотного вібраційного впливу на морфологію поверхні розділу фаз за своєю рушійною силою відповідає збільшенню швидкості вирощування монокристалу сукцинонітрилу у п'ять разів (при незмінних інших умовах).

ВИСНОВКИ

Проведено методичні розробки та тестові експерименти з метою створення дослідницької апаратури для космічного проекту «Морфос-В».

Методична робота полягала у доопрацюванні окремих вузлів та підсистем установки (градієнтної системи, вузлу віброприскорень), що є результатом аналізу попереднього етапу робіт. Розроблено технічну документацію, виготовлено макет вібраційної підсистеми та виконано комплекс досліджень для макета польотної кристалізаційної установки «Морфос-В».Зокрема виготовлено нові вузли вібраційної підсистеми, що забезпечують високу точність введення вібраційних коливань у зразок у заданому діапазоні амплітуд та частот вібрації. Експериментально доведено, що розроблені вузли гарантовано забезпечують введення коливань бажаного діапазону на всіх етапах еволюції фронту кристалізації від плоского до дендритів.

Вперше проведено тестові експерименти, які імітують досліджуваний процес у невагомості. За умов вирощування кристалу при різних швидкостях, які відповідають максимально широкому діапазону структур фронту визначено вплив аксіальних коливань на зміну морфології фронту. Дані, що мають напівякісний характер, визначили порядок величини ефекту вібраційного впливу, якій відповідає зміні швидкості протягування у 5 разів. Зазначимо, що це вперше довело надзвичайно велику ефективність аксіальних вібрацій, введення яких принципово можливо у польотних умовах і є найбільш оптимальним методом зовнішнього впливу. Крім того, доведено, що спостережені ефекти впливу на структуру викликані саме рухом розплаву перед фронтом і зникають при знятті вібрацій.

Одержані результати закладають основу для подальших пошуків та детального вивчення впливу аксіальної вібрації на окремі характерні морфологічні типи фронту кристалізації. Відзначимо, що одержані результати перевершили сподівання авторів і відкривають можливості різних технологічних впроваджень як для земних так і космічних технологічних процесів.

посилання

 Федоров О.П., Машковский А.Г. Влияние потока расплава на устойчивость фазовой границы при направленном затвердевании. Кристаллография. – 2015. – 60, № 2, С.239–248.

 Федоров О.П., Демченко В.Ф., Шуба І.В., Живолуб Є.Л. Вплив вібраційних збурень на теплові та гідродинамічні процеси в розплаві при вирощуванні кристалів методом Бріджмена. Доп. НАН України. – 2015. – № 3, С. 75-80.

 Федоров О.П., Демченко В.Ф., Живолуб Е.Л. Эффекты нестационарности при направленной кристаллизации бинарной системы в квазидвумерном образце.
Металлофизика и новейшие технологии. – 2015. – 37, № 2, С.17-23.

 Федоров О.П., Демченко В.Ф., Шуба І.В., Асніс Ю.А., Лісний А.Б. Математичне моделювання гідродинамічних та теплових процесів при вирощуванні кристалів із розплаву. Современная электрометаллургия. – 2015. – № 2, Р. 42-50.

 Федоров О.П., Демченко В.Ф. Особливості управління структурою твердіння в невагомості методами спрямованої кристалізації з накладенням вібраційного впливу. Косм. наука і технологія. – 2015. – 21, № 2. Библиогр.: 15 назв. – укр. С. 73-80

 Федоров О.П., Демченко В.Ф., Шуба И.В., Лесной А.Б. Влияние гравитационной и вибрационной конвекции на тепломассоперенос в расплаве при выращивании кристаллов методами Бриджмена и плавающей зоны. Физика и химия обработки материалов. – 2015. 7. Федоров О.П., В.Ф. Демченко, І.В. Шуба. Гравітаційна і вібраційна чутливість схем вирощування кристалів із розплаву. Математическое моделирование и информационные технологии в сварке и родственных процессах: Сб. Седьмой межд. конф./ Под редакцией проф. И.В. Кривцуна. - Киев: Международная ассоциация "Сварка", 2014. – 132, С. 8-12.

8. Живолуб Є.Л., Брехаря Г.П., Чемеринський Г.П., Комар Н.П., Димидик О.В., Перепечено Б.І., Паламарчук Т.Є. Вивчення процесу направленої кристалізації методами прямого спостереження за еволюцією фазової границі прозорих речовин в умовах мікрогравітації та накладення контрольованих вібраційних впливів. Звіт про виконання наукових досліджень, Київ - 2012 рік.

9. Живолуб Є.Л., Брехаря Г.П., Чемеринський Г.П., Федоров О. П., Ларіончик В. М. Вивчення процесу направленої кристалізації методами прямого спостереження за еволюцією фазової границі прозорих речовин в умовах мікрогравітації та накладення контрольованих вібраційних впливів. Звіт про виконання наукових досліджень, Київ - 2014 рік.