

ІННОВАЦІЙНА ТЕХНОЛОГІЯ ТА УСТАТКУВАННЯ ДЛЯ ВИРОЩУВАННЯ СУПЕРВЕЛИКИХ МОНОКРИСТАЛІВ ТУГОПЛАВКИХ МЕТАЛІВ

В.О. Шаповалов, І.В. Шейко, В.В. Якуша, О.М. Гніздило, Ю.О. Никитенко

ІЕЗ ім. Є.О. Патона НАН України. 03150, м. Київ, вул. Казимира Малевича, 11. E-mail: office@paton.kiev.ua

Розглянуто наукові і практичні аспекти вирощування монокристалів тугоплавких металів із застосуванням плазмового та індукційного джерел нагрівання. Показано технологічні переваги комбінованого плазмово-індукційного нагрівання при вирощуванні крупних монокристалів тугоплавких металів, зокрема вольфраму і молібдену. Наведено конструкцію дослідно-промислової установки УП-122М для вирощування монокристалів вольфраму і молібдену плоскої форми та її технічні характеристики. Розглянуто питання формування структури монокристалів вольфраму в умовах гібридного плазмово-індукційного нагріву та відмічені його переваги порівняно з іншими способами нагріву. Бібліогр. 11, рис. 7.

Ключові слова: монокристал; плазма; індукційний нагрів; локальна металева ванна; дислокації; поширене наплавлення; формування кристала; дуговий плазмотрон

Монокристали вольфраму і молібдену традиційно вирощують у вигляді стержнів діаметром 25...30 мм. Спроби виростити якісні кристали більшого діаметру не мали успіху. Причина — негативний вплив масштабного фактора, який неможливо перебороти традиційними технологіями.

Ураховуючи високу температуру плавлення молібдену (2890 К) та вольфраму (3690 К), для вирощування монокристалів з указаних металів застосовують висококонцентровані джерела електронагріву — електронний промінь або низькотемпературну плазмову дугу.

При збільшенні лінійних розмірів монокристалів виникають дві проблеми — утримання на поверхні грані, яка наплавається, великої металеві ванни і високі термомеханічні напруження в тілі монокристала. Температурні градієнти створюють у кристалі термічні напруги, які в окремих випадках можуть бути причиною руйнування кристала. Крім того високі термомеханічні напруги сприяють розвитку додаткової кількості дислокацій (густина дислокацій може досягати $10^7 \dots 10^8 \text{ см}^{-2}$) та значної дезорієнтації субзерен, що значно погіршує якість монокристалів.

Ідея одночасного (гібридного) застосування двох різних за природою та концентрацією енергій джерел електронагріву, що до вирощування монокристалів — плазмового та індукційного, вперше була запропонована спеціалістами Інституту електрозварювання ім. Є.О. Патона НАН України в кінці 70-х років минулого століття [1–3]. Кожен з указаних джерел нагріву виконує свої функції:

плазмово-дугове джерело нагріву використовується для переплаву витратних прутків, які подаються в зону плавлення. Водночас воно створює на грані кристала, що наплавається, локальну металеву ванну, яку переміщують під час плавки за відповідним алгоритмом, і таким чином здійснюють формування тіла монокристала заданої конфігурації;

індукційне джерело нагріву утримує локальну металеву ванну від проливів і створює задане температурне поле в тілі кристалу. Температура нагріву тіла кристала в зоні локальної металеві ванни, як показали розрахунки і безпосередні заміри, становить близько $(0,5 \dots 0,6)T_{\text{пл}}$, де $T_{\text{пл}}$ — температура плавлення матеріалу витратних прутків. Нагрів тіла кристала до вказаного температурного діапазону — один з ключових елементів створеної інноваційної технології.

Додатковий індукційний нагрів кристала значно знижує радіальний температурний градієнт та градієнт між металеві ванною і тілом кристала, що сприяє зниженню густини дислокацій (менше 10^6 см^{-2}) і формуванню більш досконалої структури. Взаємодія струму індуктора та струму, який виникає на периферії металеві ванни, створює електромагнітне поле, яке запобігає проливам рідкого металу з локальної ванни.

Вперше у світовій практиці було запропоновано використати локальну металеву ванну, яку під час плавки підживлюють шляхом переплаву витратних прутків та переміщують її по поверхні грані за відповідним алгоритмом в залежності від конфігурації монокристала, що вирощується. Розроблений метод дозволяє вирощувати моно-

В.О. Шаповалов — <https://orcid.org/0000-0003-1339-3088>, В.В. Якуша — <https://orcid.org/0000-0001-5962-9194>, Ю.О. Никитенко — <https://orcid.org/0000-0002-3609-2333>

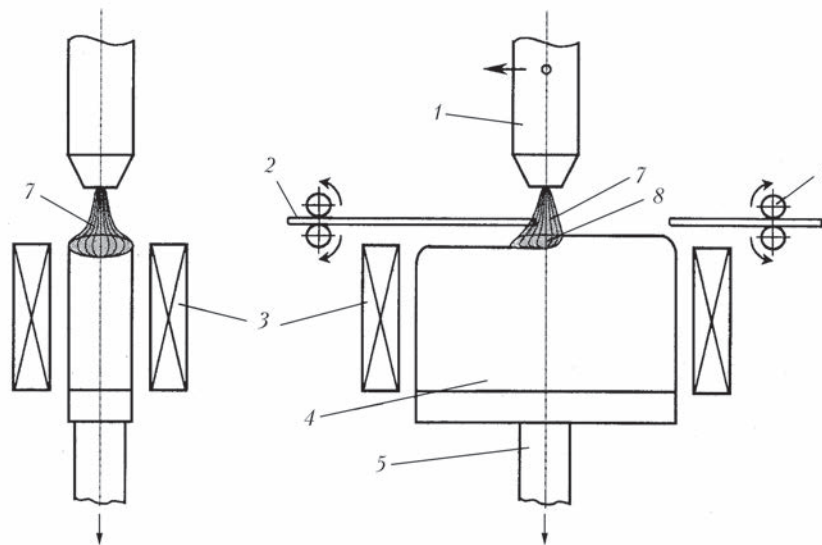


Рис. 1. Принципова схема плазмово-індукційного вирощування профільованих монокристалів тугоплавких металів: 1 — плазмотрон; 2 — витратний пруток; 3 — індуктор; 4 — кристал; 5 — шток механізму витягування монокристала; 6 — механізм подачі прутків; 7 — дугова плазма; 8 — металева ванна

кристали не тільки у вигляді тіл обертання, але і кристали плоскої форми та ін.

Тепер після багатьох років, що минули з того часу, можна впевнено сказати — це був прорив у технології і техніці вирощування супервеликих монокристалів тугоплавких металів. Це на практиці народжувалися паростки адитивних технологій. Процес вирощування монокристала, що має плоску форму, полягає у пошаровому наплавленні його повздовжньої грані в умовах контрольованого підігріву тіла кристала за допомогою високо-частотного джерела нагріву (рис. 1).

Формування кристалу відбувається шляхом переміщення локальної металевої ванни в результаті зворотно-поступального руху дугового плазмотрона. Під час переміщення локальної ванни відбувається її підживлення рідким металом, який у вигляді крапель поступає з витратного прутка, що оплавляється плазмовою дугою.

Аналогічний процес здійснюється при вирощуванні монокристалів тугоплавких металів у вигляді тіл обертання (рис. 2).

В Інституті електрозварювання ім. Є.О. Патона НАН України була створена унікальна дільниця, до складу якої увійшли дві дослідно-промислові установки для плазмово-індукційного вирощування монокристалів тугоплавких металів (УП-122М і УП-20). У створенні установок використано гібридний плазмовий та індукційний нагрів і секційна водоохолоджувана стінка, яку встановлюють в зазорі між індуктором та кристалом [4]. Установка УП-122М (рис. 3) призначена для вирощування плоских монокристалів, а УП-20 (рис. 4) розрахована на вирощування монокристалів у вигляді тіл обертання.

**Технічні характеристики
плазмово-індукційної установки УП-122М**

Максимальні розміри монокристала, мм	250×25×300
Кількість плазмотронів, шт.	1
Номінальна потужність плазмотрона, кВт	40
Срум на плазмотроні	постійний
Діапазон регулювання струму на плазмотроні, А	150...450
Плазмоутворюючий газ	Ar; Ar + He
Номінальна потужність на індукторі, кВт	160
Частота струму на індукторі, кГц	66
Швидкість переміщення плазмотрона:	
робоча, (маршова), мм/хв.	2,0...8,0 (50)
Швидкість переміщення піддону:	
робоча, (маршова), мм/хв.	1,0...2,0 (до 40)
Кількість бункерів для витратних прутків, шт.	2
Розміри витратних прутків: довжина, (діаметр), мм	800 (4...8)

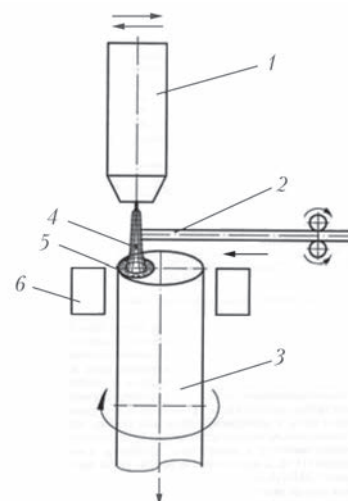
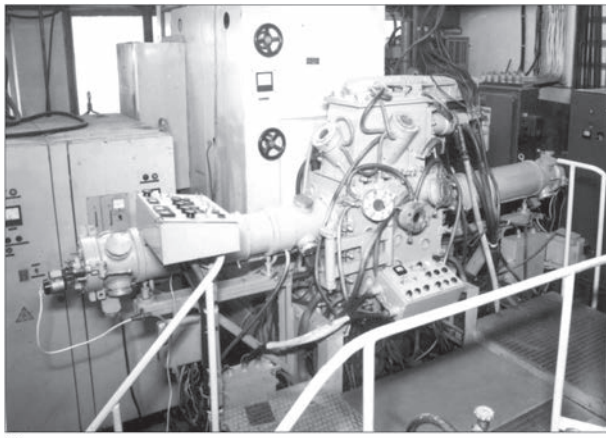
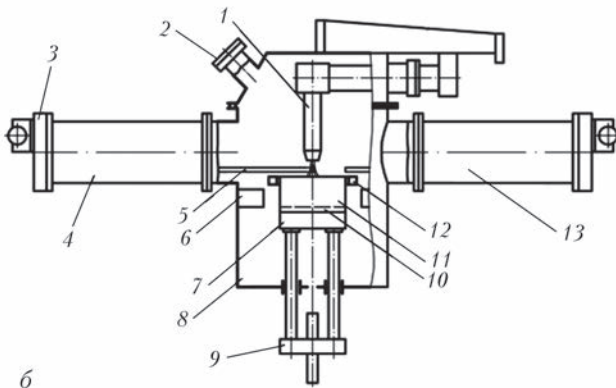


Рис. 2. Принципова схема плазмово-індукційного вирощування монокристалів тугоплавких металів у формі тіл обертання: 1 — дуговий плазмотрон; 2 — витратний пруток; 3 — кристал; 4 — крапля рідкого металу; 5 — металева ванна; 6 — індуктор



а



б

Рис. 3. Загальний вигляд установки УП-122М з площадкою для обслуговування (а) та принципова схема (б): 1 — дуговий плазмотрон; 2 — вікно; 3 — електропривод подачі витратних прутків; 4 — лівий бункер з прутками; 5 — витратний пруток; 6 — лоток для огарків; 7 — піддон; 8 — плавильна камера; 9 — механізм переміщення піддона; 10 — затравка; 11 — кристал; 12 — індуктор; 13 — лівий бункер з прутками

Кількість прутків у одному бункері, шт.	20
Максимальна маса монокристалу, кг	до 36
Швидкість подачі витратних прутків, мм/хв.	10...120
Витрати води на охолодження, м ³ /год	до 20

Дуговий плазмотрон під час вирощування плоского монокристалу здійснює зворотно-поступальне переміщення вздовж грані, яка наплавляється, і забезпечує переплавлення витратного прутка. Швидкість переміщення плазмотрона в робочому режимі регулюється в межах від 2,0 до 8,0 мм/хв. Маршова швидкість плазмотрона становить 50 мм/хв. Плазмотрон живиться від джерела постійного струму з діапазоном регулювання від 150 до 450 А. Одночасно з рухом плазмотрона відбувається переміщення локальної металевої ванни по горизонтальній поверхні монокристалу. Як тільки ванна досягає одного із кінців кристалу, рух плазмотрона зупиняють.

З протилежного боку підводять інший витратний пруток поки його кінець не торкнеться стовпа плазмової дуги. Після цього рух плазмотрона відновлюється у протилежному напрямку.

В результаті зворотно-поступального переміщення плазмотрона відбувається пошарова

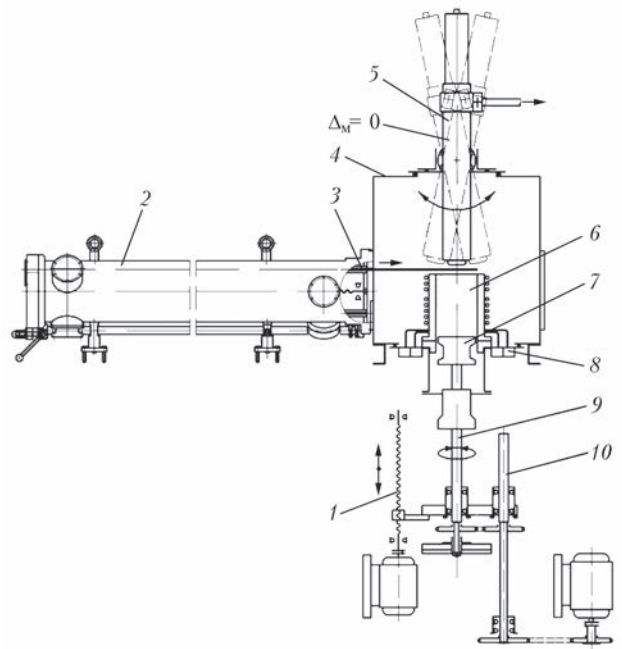


Рис. 4. Принципова схема плазмово-індукційної установки УП-20 для вирощування монокристалів тугоплавких металів у формі тіл обертання: 1 — механізм вертикального переміщення монокристалу; 2 — бункер-касета для витратних прутків; 3 — витратний пруток; 4 — плавильна камера; 5 — плазмотрон; 6 — монокристал; 7 — піддон; 8 — водяний колектор; 9 — шток механізму вертикального переміщення монокристалу; 10 — механізм обертання монокристалу

наплавка монокристалу, а отже змінюється і напрямком добудови його структури (рис. 5). По мірі збільшення висоти кристалу, його опускають вниз за допомогою механізму витягування.

Періодична зміна напрямку добудови нівелює можливі відхилення заданої кристалографічної осі росту кристалу, які зазвичай спостерігаються при вирощуванні осесиметричних кристалів [5–8]. Причиною відхилення при вирощуванні циліндричних кристалів є неповна симетрія теплового потоку від джерела нагріву і умов тепловіддачі з поверхні монокристалу.

Наслідки термоциклювання у кристалі згладжуються його підігрівом за допомогою індукційного нагріву.

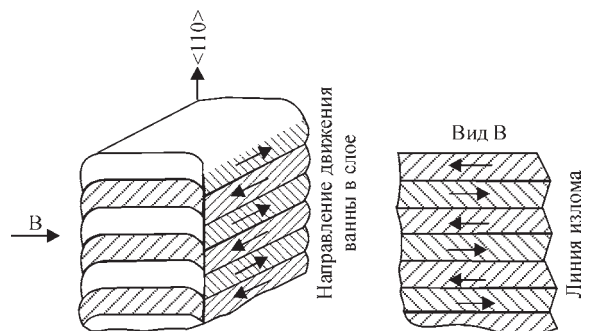


Рис. 5. Схема пошарового формування структури монокристалу

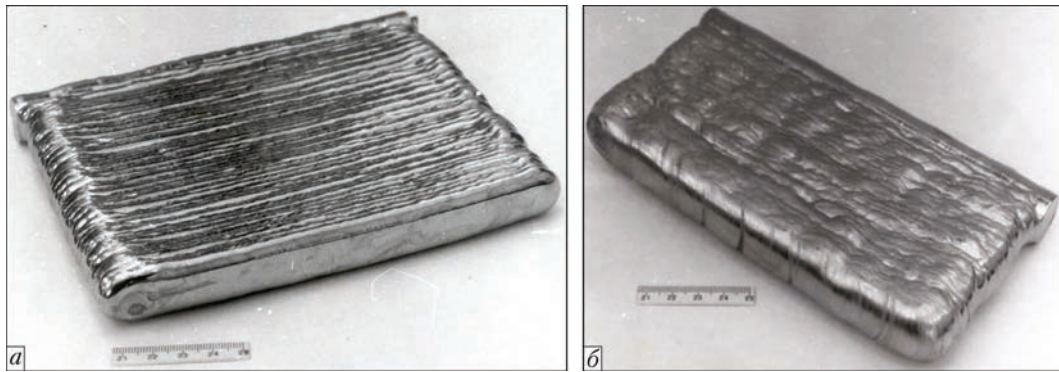


Рис. 6. Зовнішній вигляд монокристалів вольфраму (а) і молібдену (б)

Компоновка вузлів і агрегатів установки УП-20 така сама, як і установки УП-122М. Головна відмінність установки УП-20 полягає в конструкції механізму витягування монокристала, який дозволяє не тільки витягувати монокристал, але й крутити його відносно вертикальної осі з регульованою швидкістю у зворотньо-поступальному режимі.

Недоліком процесів вирощування монокристалів тугоплавких металів є їх невисока продуктивність, що обумовлено малою швидкістю плавлення витратних прутків та специфікою структуроутворення монокристалів. Так, для вольфраму швидкість плавлення витратних прутків не перевищує 15 г/хв., тому вирощування крупних монокристалів (вагою більше 10...12 кг) здійснюється на протязі 12...15 год.

За цей час витрачається величезна кількість електроенергії, плазмоутворюючих газів (аргон + гелій) та води на охолодження теплонавантажених елементів установки. В результаті вартість одного кілограму монокристалічного вольфраму досягає кількох сотен доларів США.

Тому для розширення ринку збуту монокристалічних матеріалів (вольфраму, молібдену та ін.) їх необхідно суттєво здешевити, що можна вирішити шляхом підвищення продуктивності плавильних установок.

Авторами розробки досліджено більше ніж 20 кристалів з вольфраму і молібдену, які були виплавлені на плазмово-індукційних установках.

Монокристали плоскої форми мають незначне відхилення від форми прямокутника. Їхні широкі грані мають максимальне відхилення від площини не більше 2 мм (рис. 6).

Для характеристики вирощених монокристалів застосували комплекс методів рентгеноструктурного аналізу та металографії [9–11]. Були досліджені кристали технічної чистоти. Головна вимога до кристалографічної якості полягає у тому, що відхилення заданих граней у вирощених кристалах не повинно перевищувати 5 кутових градусів.

Оцінку їх монокристалічності було виконано шляхом порівняння відбитків Лауе, отриманих у

15...20 дискретних областях (точках) на поверхнях кристалів. Симетрія дифракційної картини і достатньо чіткі рефлекси вказують на безумовну придатність терміна «монокристал» для досліджених зливків. Відхилення осі росту від заданого кристалографічного напрямку зазвичай знаходилось в межах 2...3 кутових градусів.

Для більш глибоких досліджень застосували методи рентгенівської топографії. Оцінку монокристалічності було виконано шляхом порівняння відбитків Лауе, отриманих у дискретних областях (точках) на поверхнях кристалів.

Ідентичність рентгенівських топограм (рис. 7) свідчать про те, що під час росту зміщення дифракційної картини не відбувається, тобто накопи-

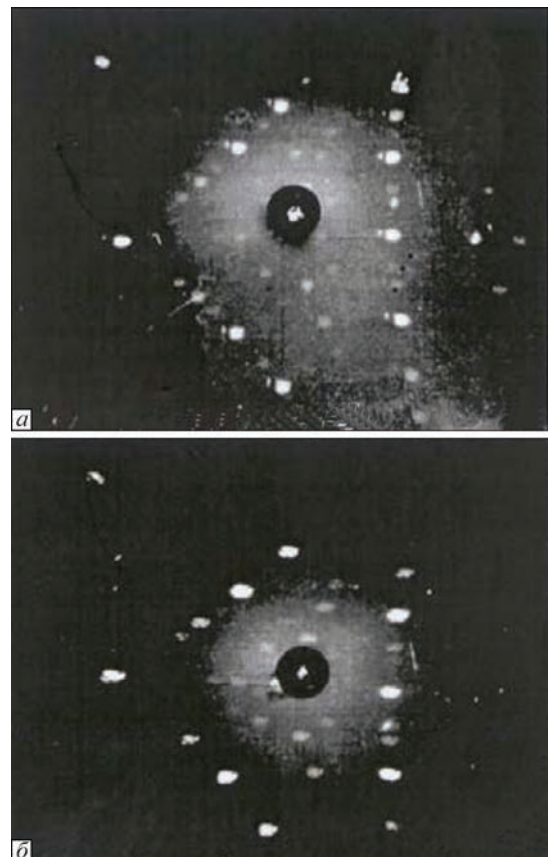


Рис. 7. Рентгенограми по Лауе монокристала вольфраму (113): а — затравочний кристал; б — вирощений кристал

чення великих дезорієнтацій вздовж утворюючої кристала не мають місця. Встановлено, що локальні орієнтації в областях зйомки майже ідентичні, а розкид орієнтацій відносно осів кристала знаходиться в межах кількох кутових градусів. На основі отриманих результатів було зроблено висновок — вирощені зливки являють собою суцільні монокристалічні тіла.

Створення і практична реалізація способу плазово-індукційного вирощування монокристалів тугоплавких металів — це дійсний прорив в галузі технології і техніки вирощування великих монокристалів тугоплавких металів, який дозволяє значно розширити асортимент виробів з них та підвищити їх якість. Сьогодні цей спосіб і технологія вирощування монокристалів не мають аналогів у світі і їх впевнено можна віднести до адитивних технологій високого рівня — High Tech.

Висновки

1. Співробітниками Інституту електрозварювання ім. Є.О. Патона НАН України на основі всебічного аналізу літературних джерел, теоретичних досліджень та експериментів створено і доведено до промислової реалізації принципово новий спосіб вирощування монокристалів тугоплавких металів, заснований на гібридному плазово-індукційному нагріві.

2. Автори розробки вперше у світовій практиці запропонували нарощувати тіло монокристала шляхом пошарової наплавки за допомогою локальної металеві ванни, яку під час плавки підживлюють шляхом переплаву витратних прутків та переміщують її по поверхні грані за відповідним алгоритмом в залежності від конфігурації монокристала.

3. Принципова відмінність запропонованого способу полягала у тому, що додатковий індукційний нагрів створює у тілі монокристала відповідне температурне поле та утримує металеву ванну від її проливу, особливо у крайових зонах монокристала.

4. Нагрів тіла монокристала до температури $(0,5...0,6)T_{пл}$ — це один з ключових чинників розробленої технології вирощування монокристалів тугоплавких металів. Визначений температурний інтервал нагріву сприяє зниженню температурного градієнта в тілі кристала майже у два рази, зменшенню густини дислокацій та формуванню більш досконалої структури.

5. Вперше вирощено монокристали вольфраму і молібдену плоскої форми розміром $210 \times 22 \times 180$ мм та досліджено їх температурне поле.

Отримані колективом авторів результати є новими та мають високе наукове, пізнавальне та практичне значення.

За розробку і впровадження інноваційних технологій та устаткування з даної тематики творчий колектив у складі Г.М. Григоренка, В.О. Шаповалова, І.В. Шейка, Ю.М. Помаріна (по-смертно), В.В. Жолудя, В.В. Якуші, О.М. Гніздила, Ю.О. Никитенка і В.Р. Бурнашева у 2019 році було відзначено Премією Кабінету Міністрів України.

Список літератури

1. Латаш Ю.В., Григоренко Г.М., Каниболоцкий С.А., Помарин Ю.М. (1981) *Способ выращивания плоских монокристаллов тугоплавких металлов*. А.с. СССР 816205.
2. Латаш Ю.В., Шейко И.В., Каниболоцкий С.А., Ивашук В.А. и др. (1985) *Способ получения плоских монокристаллов тугоплавких металлов*. А.с. СССР 1306171.
3. Шаповалов В.О., Торхов Г.Ф., Гніздило О.М., Якуша В.В. (2006) *Пристрій для вирощування монокристалів тугоплавких металів*. Україна, Пат. 81184, МПК С30В 35/00.
4. Латаш Ю.В., Шаповалов В.А., Шейко И.В. и др. (1993) *Применение холодной секционированной стенки при плазменно-индукционном нагреве*. *Проблемы спец. электротехнологии*, **1**, 92–94.
5. Бурханов Г.С., Лякишев И.П. (2002) *Металлические монокристаллы*. Москва, Издательство «ЭЛИЗ».
6. Драпела Я., Буйношкова К., Курса М. и др. (2007) *Получение чистых монокристаллов вольфрама методом электронно-лучевой плавки*. *Горный информационно-аналитический бюллетень*, **2**, 213–226.
7. Горынин И.В., Бурханов Г.С., Фармаковский Б.В. (2012) *Перспективы разработок конструкционных материалов на основе тугоплавких металлов и соединений*. *Вопросы материаловедения*, **2**, 5–15.
8. Калита В.И., Комлев Д.И. (2008) *Плазменные покрытия с нанокристаллической и аморфной структурой*. Москва, Лидер.
9. Григорович К.В. (2016) *Новые возможности методов анализа функциональных наноматериалов и высококачественных веществ*. *Сб. тр. VI Междунар. конф. с элементами научной школы для молодежи «Функциональные наноматериалы и высококачественные вещества»*. 3–7 октября 2016 г., г. Суздаль. Москва, ИМЕТ РАН, сс. 231–233.
10. Чувадьев В.Н. (2004) *Неравновесные границы зерен в металлах. Теория и приложения*. Москва, Физматгиз.
11. Манохин А.И., Бурханов Г.С. (1997) *Современное состояние проблемы металлических монокристаллов*. *Высококачественные и монокристаллические металлические материалы*. Москва, Наука, сс. 5–13.

References

1. Latash, Yu.V., Grigorenko, G.M., Kanibolotsky, S.A., Pomarin, Yu.M. (1981) *Method of growing of flat single crystals of refractory metals*. USSR author's cert. 816205 [in Russian].
2. Latash, Yu.V., Shejko, I.V., Kanibolotsky, S.A., Ivashchuk, V.A. et al. (1985) *Method of producing of flat single crystals of refractory metals*. USSR author's cert. 1306171 [in Russian].
3. Shapovalov, V.O., Torkhov, G.F., Gnizdylo, O.M., Yakusha, V.V. (2006) *Device for growing of single crystals of re-*

- fractory metals*. Ukraine Pat. 81184, Int. Cl. C30B 35/00 [in Ukrainian].
4. Latash, Yu.V., Shapovalov, V.A., Shejko, I.V. et al. (1993) Application of cold sectional wall in plasma-induction heating. *Problemy Spets. Elektrometallurgii*, **1**, 92–94 [in Russian].
 5. Burkhanov, G.S., Lyakishev, I.P. (2002) *Metallic single crystals*. Moscow, ELIZ [in Russian].
 6. Drapela, Ya., Bujnoshkova, K., Kursa, M., Burkhanov, G.S. et al. (2007) Producing of pure tungsten single crystals by electron beam melting. *Gorny Inform.-Analyt. Bulletin*, **2**, 213–226 [in Russian].
 7. Gorynin, I.V., Burkhanov, G.S., Farmakovskiy, B.V. (2012) Prospects of developments of structural materials based on refractory metals and compounds. *Voprosy Materialovedeniya*, **2**, 5–15. TsNIIKM Prometej [in Russian].
 8. Kalita, V.I., Komlev, D.I. (2008) Plasma coatings with nanocrystalline and amorphous structure. Moscow, Lider [in Russian].
 9. Grigorovich, K.V. (2016) New possibilities of methods for analysis of functional nanomaterials and high purity substances. In: Proc. of 6th Int. Conf. with Elements of Scientific School for Young People on Functional Nanomaterials and High Purity Substances (3–7 October 2016, Suzdal, RF). Moscow, IMET, 231–233 [in Russian].
 10. Chuvaldeev, V.N. (2004) Nonequilibrium grain boundaries in metals. Theory and applications. Moscow, Fizmatgiz [in Russian].
 11. Manokhin, A.I., Burkhanov, G.S. (1997) State-of-the-art of the problem of metallic single crystals. High purity and single crystals of metallic materials. Moscow, Nauka, 5–13 [in Russian].

INNOVATIVE TECHNOLOGY AND EQUIPMENT
FOR GROWING SUPER-LARGE SINGLE-CRYSTALS OF METALS
V.O. Shapovalov, I.V. Sheiko, V.V. Yakusha, O.M. Gnizdylo, Yu.O. Nikitenko
E.O. Paton Electric Welding Institute of the NAS of Ukraine.

11 Kazymyr Malevykh Str., 03150, Kyiv, Ukraine. E-mail: office@paton.kiev.ua

The scientific and applied aspects of growing single crystals of refractory metals using plasma and induction heating sources are considered. The technological advantages of combined plasma-induction heating when growing large single crystals of refractory metals, in particular tungsten and molybdenum, are shown. The design of the UP-122M pilot plant for growing flat single crystals of tungsten and molybdenum and its technical characteristics are given. The problems of formation of the structure of tungsten single crystals under the conditions of hybrid plasma-induction heating are considered, and its advantages are compared with other heating methods. Ref. 11, Fig. 7.

Key words: single crystal; plasma; induction heating; local metal bath; dislocation; layer melting; crystal formation; arc plasmatron

Надійшла до редакції 16.01.2020

ВЕДУЩАЯ ВЫСТАВКА В МИРЕ
СВАРКА • РЕЗКА • ОБРАБОТКА

SCHWEISSEN & SCHNEIDEN
No. 1 IN THE WORLD

LET'S JOIN THE WORLD!
13.–17. сентября 2021

РЕГИСТРИРУЙТЕСЬ СЕЙЧАС!

www.schweissen-schneiden.com

DVS GERMAN WELDING SOCIETY

MESSE ESSEN