



*The interrelation between frequencies of acoustic emission signals during crystallization of aluminium and kinetics of surface movement is established.*

В. Б. ВОРОНЦОВ, Д. В. ЖУРАВЛЕВ,  
Уральский государственный университет путей сообщения

УДК 539.2:532.7:536.42

## КЛАСТЕРНЫЙ МЕХАНИЗМ ФОРМИРОВАНИЯ ТВЕРДОЙ ФАЗЫ НА ПРИМЕРЕ РОСТА МОНОКРИСТАЛЛОВ АЛЮМИНИЯ ИЗ РАСПЛАВА

Представления о близости структур расплава и твердой фазы впервые изложены в работах [1, 2]. Они подтверждались многими учеными, главным образом, в объяснении поведения и свойств самых разнообразных жидкостей. Согласно работе В. О. Есина [3], основным механизмом разрушения дальнего порядка в процессе плавления является кооперативное разупорядочение решетки, сопровождающееся разбиением ее на кластеры-области с упорядоченным расположением частиц, близким к существующему в кристалле. Это сопровождается одновременно появлением в системе дополнительного свободного объема. Все эти рассуждения слабо подтверждены экспериментально и поэтому любое продвижение в области исследования структурной неоднородности жидкости имеет первостепенное значение.

В данной работе для получения информации о структурном состоянии расплава очень плодотворным оказался спектральный анализ сигналов акустической эмиссии (АЭ) из зоны кристаллизации. Эффект акустической эмиссии, генерацию акустических волн при кристаллизации, большинство исследователей связывают с усадкой металлов при затвердевании, т. е. с уменьшением свободного объема. Однако механизм появления сигналов до сих пор не изучен несмотря на большой интерес к этому физическому явлению.

В научном плане получение новой информации из зоны кристаллизации позволит подойти к объяснению процесса кристаллообразования. В техническом отношении введение ультразвуковых волн в резонанс с частотами, генерируемыми поверхностью раздела, позволит эффективно воздействовать на расплав, измельчать зерно и, в конечном счете, улучшать потребительские качества металла.

Цель настоящего исследования.

1. Определение частотного диапазона сигналов АЭ, сопровождающего кристаллизацию алюминия с целью их дальнейшего введения в расплав для улучшения физико-химических характеристик литья.

2. Фурье-анализ сигналов АЭ.

В работе [4] дано объяснение появления сигналов АЭ в звуковой области. В настоящей работе в продолжение наших исследований на основании экспериментальных результатов излагается наше представление о характере процесса кристаллообразования и причинах появления сигналов АЭ на примере выращивания монокристаллов.

### Экспериментальная часть

В качестве модельного материала выбран Al с чистотой 99,999.

Для решения поставленных задач была разработана установка (рис. 1), которая позволяла выращивать монокристаллы металлов с температурой плавления до 1000 °С по методу Бриджмана в атмосфере спектрально-чистого аргона. Выращивались монокристаллы Al с затравкой ориентации <100> в «мягком» тигле из BN (нитрид бора).

Содержимое тигля и 50% длины затравки расплавляли, затем в расплав вводили алундовый волновод со встроенной термопарой на глубину 0,5 см ниже зеркала расплава так, что расстояние от затравки до волновода составляло 4 см. Температурный градиент в расплаве составил 25°/см при неподвижной печи и 10°/см – при движении печи со скоростью 4,2 мм/мин.

В нашем эксперименте при выращивании монокристалла печь / продвигалась вверх при непод-

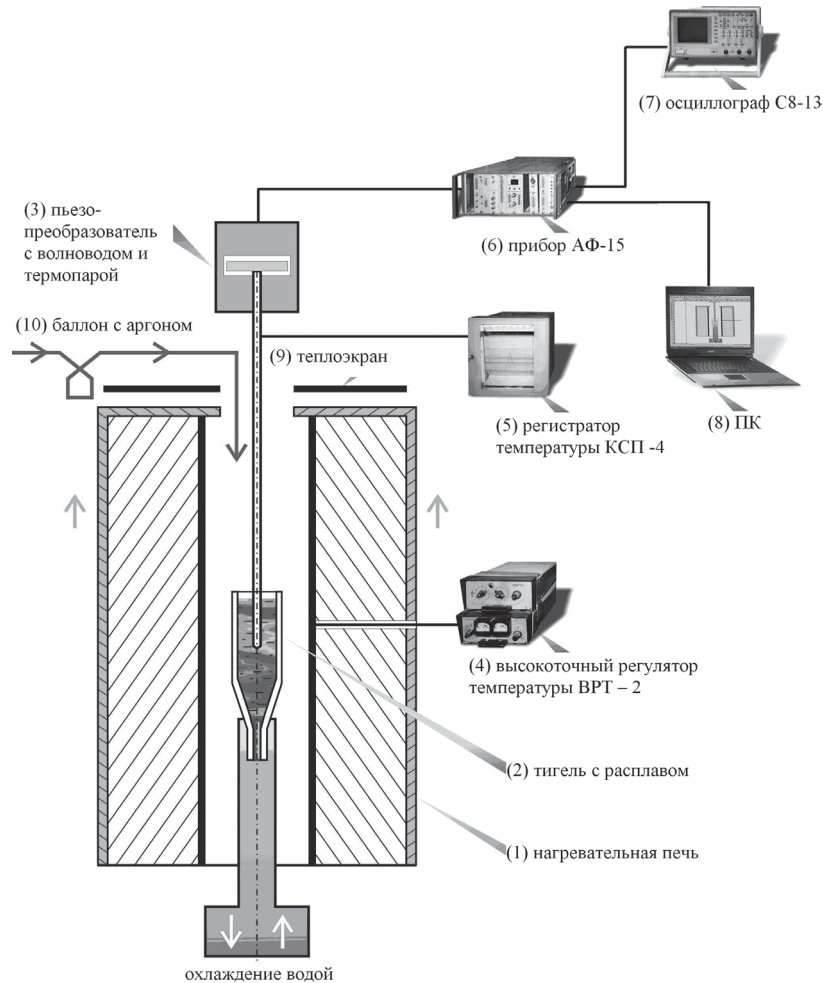


Рис. 1

вижном тигле и сигналы АЭ от межфазной поверхности достигали волновода и передавались ПЭП 3, расположенному в торцевой части волновода. Вся информация в аналоговой форме поступала после усиления АЭ-15 6 на ПК 8 со встроенным цифровым преобразователем АЦП.

В качестве прикладных программ для последующей обработки сигнала были использованы программы MathCad и ISVI (Instrumental Systems technology). Пакеты программ, адаптированные к поставленным задачам, позволяли проводить Фурье-анализ сигналов АЭ в частотном диапазоне от 20 кГц до 2 МГц в реальном масштабе времени.

Полученный экспериментальный материал позволял решать две самостоятельные, но связанные задачи.

1. С использованием пакета программ ISVI был проведен Фурье-анализ спектра индивидуально каждого АЭ сигнала и всего фона, сопровождающего выращивание монокристаллов.

2. Амплитудно-частотный анализ временных отрезков, взятых из аналоговой записи на всех участках, где присутствуют сигналы, превышающие по амплитуде фон в 10 раз и более.

2.1. Амплитудно-частотный анализ спектра сигналов, когда печь неподвижна: волновод помещен в расплав (начало эксперимента).

2.2. Амплитудно-частотный анализ (10 мин кристаллизации при движущейся печи).

Для получения представления о спектральном составе сигналов АЭ и кинетике процесса кристаллообразования был проведен следующий эксперимент. Расплав выдерживали при температуре 780 °С в течение 5 мин, затем включали движение печи, которое сохранялось до полного затвердевания металла.

Для проведения эксперимента выбран сертифицированный датчик ЦТС с частотным диапазоном 20–200 кГц. Эксперимент состоял из двух частей.

В первой части эксперимента нас интересовал прежде всего амплитудно-частотный спектр отдельного события (его частотная «структура»). Следующий этап – Фурье-анализ отрезков временной развертки на различном расстоянии от начала кристаллизации. И, наконец, проводили амплитудно-частотный анализ всего временного интервала для первой и второй частей эксперимента.

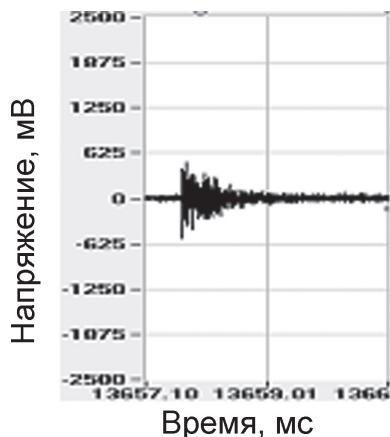


Рис. 2

Необходимо отметить, что условия на границе межфазной поверхности для первой и второй частей эксперимента существенно отличаются. Температурный градиент для первой части эксперимента в 2,5 раза выше, чем для второй части.

### Первая часть эксперимента (время анализа 2 мин)

Было установлено присутствие сигналов эмиссии 26,2 кГц, сопровождающих весь кристаллизационный период, включающий первую и вторую части эксперимента с незначительной амплитудой, не превышающей фон на временной развертке (рис. 2).

На рис. 3 показан Фурье-анализ данного сигнала. В «структуре» сигналов присутствуют все частоты, но существуют и характерные частоты с амплитудами, превышающими фон в 10 раз и более. Эти частоты проявляются всегда во всех сигналах в том или ином наборе на всех этапах кристаллизации.

На рис. 4 представлен амплитудно-частотный Фурье-анализ последнего 2-минутного временного отрезка первой части эксперимента, откуда сле-

дует присутствие частот от 29 до 133 кГц с наибольшими амплитудами для частот данных, приведенных в таблице,  $f_2 = 41,7$  кГц,  $f_7 = 113,7$ ,  $f_9 = 125,5$  кГц.

Результаты второй части эксперимента приведены на рис. 5. Из данных таблицы следует, что общая картина амплитудно-частотного спектра осталась прежней, однако амплитуда сигналов снизилась на всем анализируемом интервале частот примерно в 1,5 раза, а амплитуда частоты 29,26 кГц увеличилась в 50 раз в сравнении со стационарным состоянием печи.

При затвердевании 80% общего объема расплава амплитуды всех частот начинают уменьшаться и в конце затвердевания все частоты исчезают кроме частот в интервале 110–133 кГц, при этом наибольшая мощность у частоты 122 кГц.

### Обсуждение результатов

Из полученных данных следует, что сигналы АЭ появляются с начала кристаллизации и сопровождают ее до полного затвердевания. В начале первой части эксперимента появилось шесть сигналов, превышающих фон; во второй – 270 сигналов, но существует около 1 млн сигналов с частотой 26,2 кГц. Последние по амплитуде не превышают фоновых значений. Результаты, изложенные выше, хорошо согласуются с представлениями Я. И. Френкеля о структуре расплава [5] и В. О. Есина [3].

В стационарном случае (отсутствие движения) Фурье-анализ показал, что частоты в структуре сигналов строго регламентированы, они возникают в том или другом сочетании и отличаются по амплитуде, но шаг от одной частоты до другой сохраняется и составляет 10 кГц, что позволяет сделать предположение, что в нашем случае, когда перегрев расплава незначительно выше точки кри-

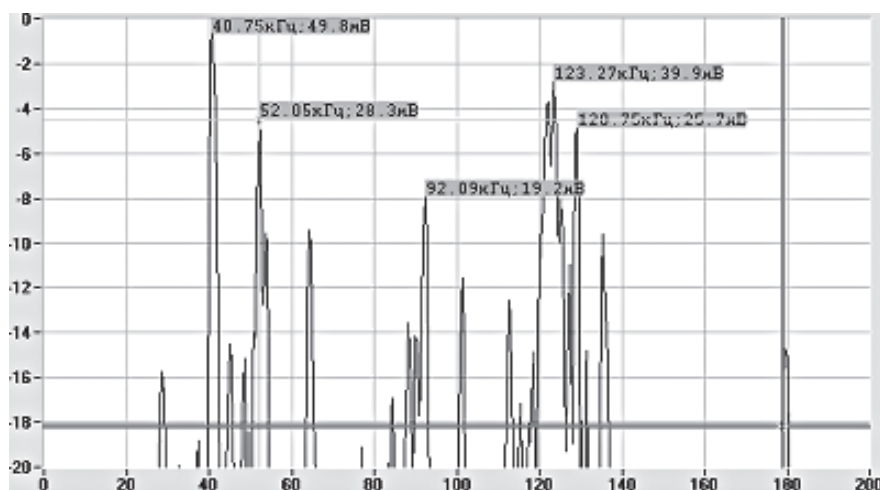
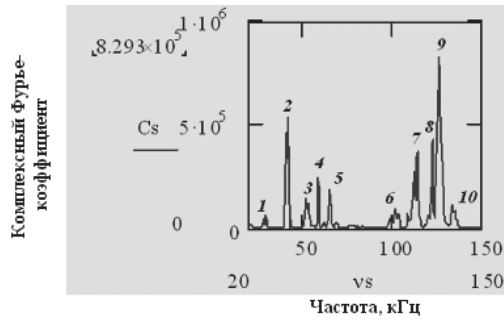


Рис. 3



Номер	Частота, кГц	Комплексный Фурье-коэффициент
1	29,399	63652
2	41,753	$5,35 \cdot 10^5$
3	51,421	$1,43 \cdot 10^5$
4	58,403	$2,42 \cdot 10^5$
5	64,85	$1,84 \cdot 10^5$
6	101,37	98711
7	113,73	$3,7 \cdot 10^5$
8	122,32	$4,25 \cdot 10^5$
9	125,54	$8,29 \cdot 10^5$
10	133,06	$1,11 \cdot 10^5$

Рис. 4

сталлизации и составляет 120 °С, структурные образования с хорошо выраженным кристаллическим строением сохраняются в отдельных областях расплава и есть области с большим разупорядочением, сохранившим кристаллическое ядро и аморфную периферию, т. е. «кластеры» в их обычном понимании. Первые составляют 100–300 сигналов, а вторых во много раз больше (около 1 млн сигналов) [4]. В процессе кристаллизации отдельные остовы кристаллических областей разные по величине оседают на межфазной поверхности и дают старт для дальнейшего роста твердой фазы. На пе-

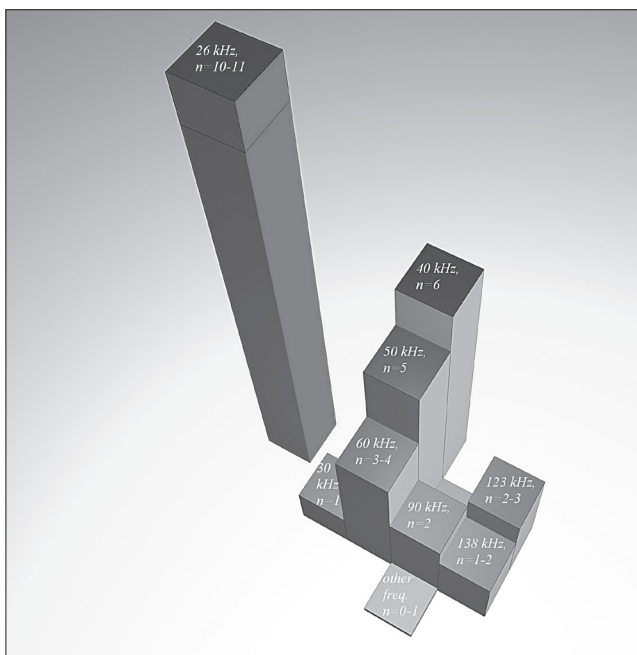
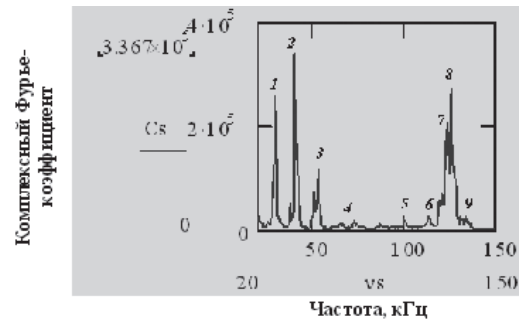


Рис. 6



Номер	Частота, кГц	Комплексный Фурье-коэффициент
1	29,259	$2,57 \cdot 10^5$
2	39,769	$3,36 \cdot 10^5$
3	52,782	$1,13 \cdot 10^5$
4	72,3	18765
5	99,828	19246
6	113,34	24350
7	123,35	$2,05 \cdot 10^5$
8	125,35	$2,73 \cdot 10^5$
9	133,36	27577

Рис. 5

риферии такого структурного образования существует многоступенчатый профиль, составленный в трехмерном пространстве из столбиков с площадью основания, равной основанию кубической решетки Al, и высотой от 2 до 10 межплоскостных расстояний (рис. 6).

При кристаллизации для каждой частоты существует свой высвободившийся свободный объем (исходя из различия для каждой частоты) расстояния продвижения фронта вглубь расплава. Свободный объем схлопывается в результате гидростатного давления столба с возникновением звукового эффекта, фиксируемого приборами. Так как кристаллические образования («кластеры») отличаются структурой периферийного профиля, генерируемые звуковые частоты различны. Периодичность продвижения фронта дает периодичность появления звукового эффекта.

Высказанные предположения хорошо подтверждаются расчетом реализуемой частоты импульсов АЭ при кристаллизации:

$$f = \frac{V}{Ln},$$

где  $f$  – частота продвижения фронта кристаллизации;  $V$  – скорость выращивания монокристаллов;  $L$  – период кристаллической решетки Al;  $n$  – число межплоскостных расстояний.

Расчеты проведены в предположении, что  $V = 5,9$  мм/мин,  $L = 4,05 \cdot 10^{-7}$  мм (межплоскостное расстояние для кристаллической решетки алюминия).

Ниже приведены результаты расчета частот, составляющих сигналы.

$n$	$f$ , кГц
1	246
2	123
3	82
4	63
5	49
6	41
7	35
8	30,8
9	27,3
10	24,6

Если предположить, что продвижение фронта кристаллизации периодически перпендикулярно поверхности раздела с периодом, соответствующим межплоскостному расстоянию, то соответственно для осевшего кристаллического «кластера», для каждой ступеньки профиля имеется свое число межплоскостных расстояний, образующих ступеньку, и своя генетическая связь с принимающей межфазной поверхностью. Далее этот процесс идет до полного исчезновения жидкой фазы. В этом случае выделившийся свободный объем не

имеет возможности релаксации и процесс становится детерминированным.

### Выводы

Основной процесс кристаллообразования протекает, по-видимому, с посадкой «мягких» кластеров, состоящих из 9–10 межплоскостных расстояний, им соответствует частота 26 кГц, которая наблюдается за весь период кристаллизации алюминия. Температурный градиент для первой части эксперимента в 2,5 раза выше, чем для второй, поэтому амплитуда сигналов в первой части эксперимента примерно в 1,3 раза больше, чем во второй части.

Процесс кристаллизации алюминия периодический, с периодом, равным высоте ступеньки, которая состоит из  $n$  межплоскостных расстояний  $L$ . Наши эксперименты подтвердили нормальный механизм кристаллизации для металла, а частоты, связанные с продвижением поверхности, по-видимому, заложены в микроскопических явлениях, которые являются предметом дальнейших исследований.

### Литература

1. Stewart G. W. // Phys. Rev. 1931. Vol. 37. N 1. P. 9–16.
2. Френкель Я. И. Кинетическая теория жидкостей. Л.: Наука, 1975.
3. Есин В. О. Структурное разупорядочение границ и плавление металлических кристаллов. М.: Наука, 1985.
4. Vorontsov V. B., Katalnikov V. V. Relationship between acoustic emission during phase transitions of the melt-solid body and the structure of the melt of metallic systems // Proceedings of the Russian Conference «Structure and Properties of Metal and Slag Melts». 2004. Vol. 4. P. 12.
5. Френкель Я. И. Введение в теорию металлов. Л.: Наука, 1972.