



تخلیص پودر فلورید لیتیم به روش ذوب منطقه‌ای

راحله خطیری*، حیدر فری‌پور، حسین کلباسی، مجتبی اسماعیل‌نیا، زهرا دررئز، بهزاد ارحامی، نوراله علی‌اکبری، اسماعیل جنگجو
پژوهشکده‌ی فوتونیک و فناوری‌های کوانتومی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۳۶-۱۳۶۵، تهران - ایران

چکیده: به منظور دستیابی به بلورهایی با کیفیت بالاتر، استفاده از مواد اولیه با درجه‌ی خلوص بالا، امری ضروری است که در این میان ذوب منطقه‌ای یکی از روش‌های دستیابی به این هدف است. در این روش، یک ناحیه‌ی کوچک مذاب به آرامی در میان ناحیه‌ی جامد حرکت می‌کند و ضمن عبور، سبب حذف ناخالصی‌ها در طول ماده‌ی منجمد، و یا توزیع مطلوب مواد حل شده در جامد می‌شود. تعداد، اندازه و طول مناطق ذوب نقش مؤثری در نتیجه‌ی نهایی دارد. در این مقاله، ابتدا دستگاه خالص‌سازی منطقه‌ای تجهیز شد، سپس کوره با سرعت 20 mm/h^{-1} از پودر LiF که در بوته‌ی گرافیتی تحت خلأ قرار داشت، ۷، ۹ و ۱۴ بار عبور داده، و پودر تخلیص شد. در نهایت میزان ناخالصی‌ها از قبیل Ba، Fe قبل و بعد از خالص‌سازی منطقه‌ای، با دستگاه آنالیز جفت‌شدگی القایی (ICP) بررسی شد.

کلیدواژه‌ها: خالص‌سازی، لیتیم فلوراید، آهن، بارییم، ICP

Purification of LiF Powder by Zone Melting Method

R. Khatiri*, H. Faripour, H. Kalbasi, M. Esmailnia, Z. Dorriz, B. Arhami, N.A. Akbari, E. Jangjoo

Photons and Quantum Technologies Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 11365-836, Tehran – Iran

Abstract: In order to achieve high quality crystals, it is necessary to purify the raw material. In the present experimental study, the zone melting method was used to purify Lithium Fluoride powder. A small amount of melt moves slowly from the solid area in order to remove impurities in the frozen solid. In this case, the number, size and length of the zone melting affect the final result, and cause the optimal distribution of solutes. At the beginning, the regional purification system was equipped. The mechanism of work was moving furnace on a graphic crucible with full of LiF powder by 20 mm/h^{-1} . This procedure was followed in a vacuum for 7, 9 and 14 times. At last the amounts of impurities such as Fe, Ba were measured by ICP (Inductively Coupled Plasma) analysis before and after purification.

Keywords: Purification, Lithium Fluoride, Fe, Ba, ICP



۱. مقدمه

مواد با خلوص بالا، رفتار و خواص ویژه‌ی منحصر به فردی دارند، که مطالعه، پژوهش و تولید آن‌ها ضروری به نظر می‌رسد. کاهش قابل توجه ناخالصی‌ها تأثیر چشم‌گیری در خواص فیزیکی و شیمیایی مواد دارد و دستیابی به این امر مستلزم ترکیب روش‌های فیزیکی و شیمیایی است [۱]. نقص‌های ساختاری در بلورها بر بسیاری از خواص آن‌ها اثرگذارند و از جمله مشکلات مهم ساختارهای بلوری به شمار می‌آیند. اتم‌های خارجی و یا ناخالصی‌ها از جمله مهم‌ترین نقص‌های شبکه‌ای شناخته می‌شوند. از آن‌جا که اکثر قطعات نوری نیاز به دقت و تکرارپذیری بالایی دارند، برای دستیابی به این هدف باید از مواد با خلوص بالا استفاده شود. ماده‌ی اولیه ابتدا از سنگ معدن استخراج، و سپس با روش‌های شیمیایی، الکتریکی و متالورژی حرارتی تخلیص می‌شود. در روش‌های الکتروشیمیایی، مواد در نهایت به خلوص ۴N-۳ (۹۹/۹۹٪-۹۹/۹٪) می‌رسند که هنوز بخش قابل ملاحظه‌ای از ناخالصی‌ها در آن‌ها باقی مانده‌اند. N به عنوان نماد پیشنهادی در میزان خلوص مواد به کار برده می‌شود. ۳N به معنای ۹۹/۹ درصد، و ۳N۵ به معنای ۹۹/۹۵ درصد خلوص ماده است. خالص‌سازی منطقه‌ای معمولاً مرحله‌ی پایانی خالص‌سازی است. با این روش می‌توان به خلوص به اندازه‌ی ۵N دست یافت. خالص‌سازی منطقه‌ای را اولین بار Pfann در سال ۱۹۵۲ انجام داد. این روش برای ترکیبات نیمه‌هادی، فلزها، ترکیبات آلی و غیرآلی و به منظور دستیابی به خواص الکتریکی و نوری مورد نظر در سلول‌های خورشیدی، و آشکارسازهای تصویربرداری به کار می‌روند. تولید و پیشرفت ترانزیستورها و تقاضا برای ژرمانیم خالص سبب توسعه‌ی این روش شد [۲]. در این روش، برای کنترل ناخالصی‌ها یا ماده‌ی افزوده شده در پودر یا بلور، تعدادی منطقه‌ی مذاب از مواد اولیه جامد عبور می‌کنند و ناخالصی‌ها با حرکت در همان جهت و یا خلاف جهت حرکت منطقه‌ی مذاب، در یک انتها جمع می‌شوند. ذوب منطقه‌ای با استفاده از تفاوت ترکیب بین مذاب و جامد منجمد شده، ناخالصی‌ها را در مواد توزیع و یا حذف

می‌کند. بنابراین از این روش می‌توان برای توزیع مطلوب و یکنواخت ناخالصی اضافه شده به تک بلور و یا تخلیص استفاده کرد [۳، ۴].

در این پژوهش، خالص‌سازی پودر فلورید لیتیم به روش ذوب منطقه‌ای بررسی و اجرا شده است.

۲. تئوری روش

زمانی که مقدار تقریباً زیادی مذاب با غلظت پایین از ناخالصی‌ها یا ماده‌ی حل شده منجمد شود، ترکیب در فصل مشترک انجماد عموماً از مذاب متفاوت است. زیرا به طور طبیعی بعد از انجماد، ناخالصی‌ها به سمت مذاب رانده می‌شوند. شکل ۱. الف انجماد تعادلی را نشان می‌دهد، که در این نوع از انجماد، سرعت رانده شدن ناخالصی از جامد به سمت مذاب، با نفوذ آن در مذاب یکسان است و این پدیده در عمل اتفاق نمی‌افتد [۵]. در این شکل C_s و C_l به ترتیب غلظت ناخالصی و یا ماده‌ی حل شده در جامد و مذاب است و نقطه‌ی صفر فصل مشترک مذاب و جامد را نشان می‌دهد. شکل ۱. ب نشان‌دهنده‌ی انجماد نرمال است که در آن رانده شدن ناخالصی‌ها از جامد با سرعت بیش‌تری نسبت به نفوذ دوباره‌ی آن‌ها در مذاب اتفاق می‌افتد. بنابراین در فصل مشترک فازهای جامد و مایع (لایه‌ی مرزی) غلظتی در مذاب شکل

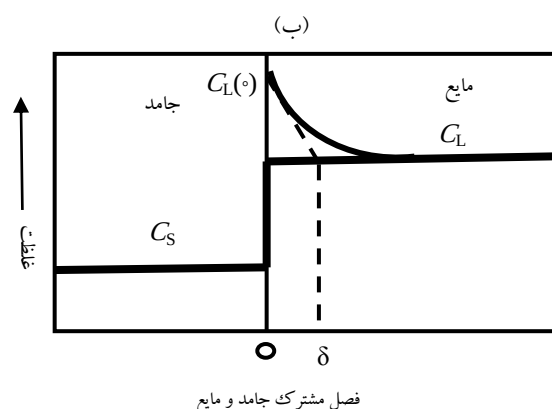
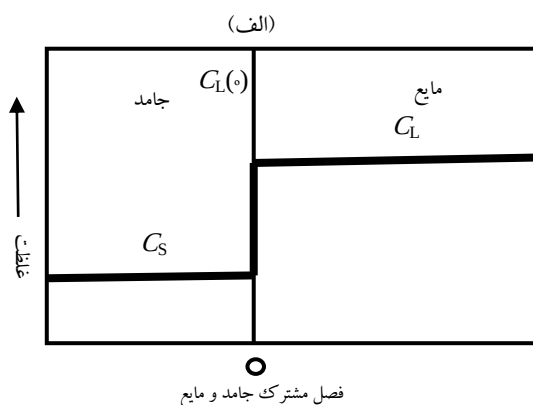
می‌گیرد که در آن تغییرات غلظت ناخالصی‌ها در مقایسه با توده-ی مذاب بسیار بزرگ‌تر است. با افزایش سرعت عبور منطقه‌ی مذاب، ضخامت این لایه افزایش می‌یابد و احتمال دارد تلاطم در آن سبب ایجاد مشکلاتی در جدایش و خالص‌سازی شود. کاهش ضخامت این لایه تنها زمانی رخ می‌دهد که جریان همرفتی جبری ناشی از چرخش بلور در منطقه‌ی ذوب وجود داشته باشد. با این حال در اکثر مطالعات، ساز و کار هم‌خوردن به کار نرفته است و فقط نفوذ، تنها عامل مخلوط شدن در نظر گرفته می‌شود [۶، ۷].

در این مقاله ابتدا دستگاه خالص‌سازی منطقه‌ای در آزمایشگاه رشد بلور تجهیز، و سپس کوره‌ی مقاومتی با توان ۱۹۰۰W ساخته شد. در ادامه نرم‌افزار کنترل سرعت کوره نیز آماده شد. در نهایت کوره با سرعت 20 mm/h^{-1} از پودر LiF که در بوتۀ گرافیتی تحت خلأ قرار داشت، ۷، ۹ و ۱۴ بار عبور کرد و پودر تخلیص شد. میزان ناخالصی‌ها از قبیل Ba، Fe قبل و بعد از خالص‌سازی منطقه‌ای، با دستگاه آنالیز ICP بررسی می‌شود.

۳. بخش تجربی

در این پژوهش از دستگاه خالص‌سازی منطقه‌ای افقی اتوماتیک استفاده شد. این دستگاه برای اولین بار در آزمایشگاه رشد بلور سازمان انرژی اتمی ساخته شده است. در شکل ۲ قسمت‌های مختلف دستگاه شامل کوره‌ی مقاومتی، لوله‌ی کوارتز، کپسول گاز آرگون، دستگاه کنترل‌کننده‌ی دما (PID) و خروجی گاز در روغن نشان داده شده است. طرح دستگاه نیز در شکل ۳ نشان داده شده است. ابتدا کوره‌ی مقاومتی با المنت‌هایی با قطر ۴ mm ساخته شد. سپس با سرعت 30°C/h کوره پخته شد. توان کوره در حدود ۱۹۰۰W است که حداکثر تا دمای 1200°C تحمل دارد. در ادامه، پروفایل دمایی کوره با استفاده از ترموکپل NiCr-Ni نوع k انجام شد. این آزمایش دو هدف را دنبال می‌کند:

۱. دستیابی به دمای واقعی داخل بوتۀ (با توجه به فاصله‌ی کوره از بوتۀ).
۲. طول بهینه‌ی منطقه ذوب (برای جدایش مؤثرتر، طول منطقه مذاب در محدوده‌ی ۲ تا ۶ cm باشد [۱]).



شکل ۱. الف) انجماد تعادلی، ب) انجماد نرمال.

محدودیت‌های خالص‌سازی منطقه‌ای را می‌توان به صورت زیر بیان کرد:

۱. ترکیباتی را که در مایع و در نقطه‌ی ذوب تجزیه می‌شوند را نمی‌توان با این روش جداسازی کرد. به عبارت دیگر تجزیه‌ی حرارتی مانع بزرگی بر سر راه خالص‌سازی منطقه‌ای است.

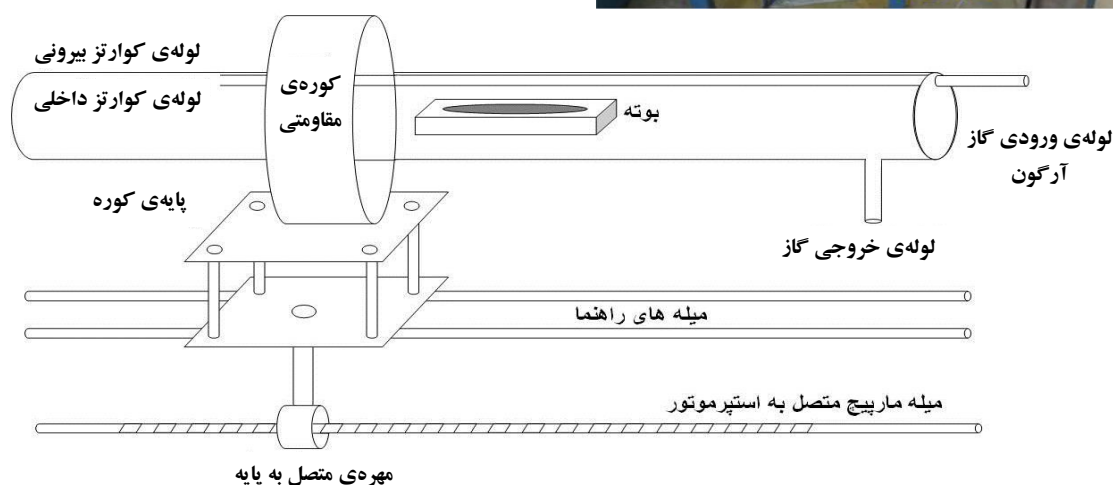
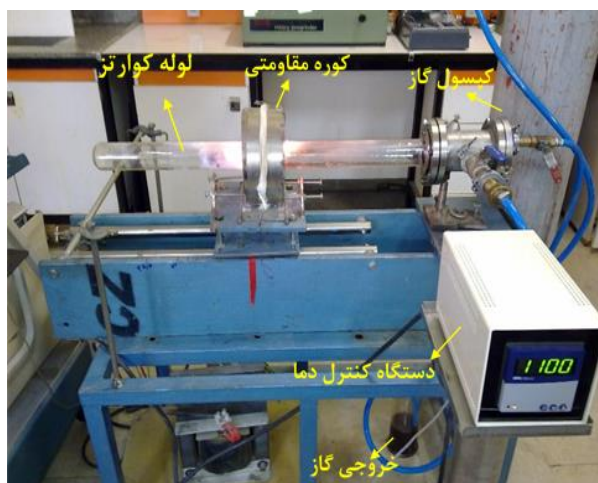
۲. طبق رابطه‌ی انیشتین-استوکس: $D_i = \frac{TK_B}{4\eta\pi r_i}$ که در آن، η

گرانروی، D ضریب نفوذ یون مورد نظر در مذاب، T دمای نقطه‌ی ذوب، K_B ثابت بولتزمن، r_i شعاع یونی و π عدد $3/14$ است. با توجه به ثابت بودن T ، K_B و π ، برای یک مذاب با گرانروی بالا، ضریب نفوذ یون کوچک‌تر می‌شود و در نتیجه پالایش آن مشکل‌تر است. البته می‌توان این موضوع را با سرعت‌های حرکت بسیار پایین منطقه‌ی ذوب (کم‌تر از 1 mm/h) کنترل کرد [۸].

۳. مواد خالص شده نباید در معرض هوا و بخار آب قرار گیرند [۹].



شکل ۲. دستگاه و تجهیزات تخلیص منطقه‌ای.



شکل ۳. طرح دستگاه تخلیص منطقه‌ای.

اولیه داخل بوته ریخته، و به درون محفظه‌ی کوارتزی منتقل شد. کوره به آرامی از دمای محیط تا دمای 600°C تحت خلأ Torr $^{-2} \times 10^{-2}$ قرار گرفت. در نهایت پمپ خلأ جدا، و شارش گاز آرگون به درون محفظه انجام شد. با عبور تنها یک بار کوره از بوته به علت بخارهای شدید LiF و واکنش با کوارتز، لایه‌ای سفید روی لوله را پوشاند (شکل ۵، الف). به همین علت تصمیم بر آن شد که درپوشی برای بوته طراحی شود که در شکل ۵، ب مشاهده می‌شود. شکل ۵، ج نیز خروج بوته گداخته را از کوره نشان می‌دهد. بعد از ساخت و تنظیم دستگاه، خالص‌سازی مواد اولیه با سرعت عبور 20 mm/h کوره از بوته شروع شد. در سه آزمایش جداگانه که به ترتیب ۳، ۴ و ۵ روز طول کشید، کوره ۷، ۹ و ۱۴ بار از سطح بوته عبور داده شد. نمونه‌ها به صورت شمش‌هایی آماده، و برای آنالیز به آزمایشگاه ICP فرستاده شدند. شکل ۶ (الف، ب و ج)

شکل ۴ تغییرات دما نسبت به فاصله‌ی کوره از ابتدای ترموکوپل را نشان می‌دهد. شروع حرکت کوره نقطه‌ی صفر در نظر گرفته شد. با حرکت کوره با فاصله‌های ۱۰ میلی‌متری، دما افزایش می‌یابد. زمانی که ترموکوپل درست در مرکز کوره قرار گرفت، دما به بالاترین میزان می‌رسد. در شکل ۴، الف، دمای کوره در 1100°C تنظیم شده است. با توجه به این که نقطه‌ی ذوب LiF ، 850°C است همان‌طور که ملاحظه می‌شود، طول منطقه‌ی ذوب بین دماهای 88°C و 888°C و در حدود 1 cm است. به منظور اطمینان از ذوب کامل ماده‌ی اولیه، دمای کوره را 20°C بالاتر برده، و دوباره تغییرات بررسی شدند. در شکل ۴، ب، منطقه‌ی ذوب بین نقاط 900°C تا 880°C است که طولی در حدود 2 cm دارد. در ادامه، مواد اولیه با خلوص 2 N در بوته‌ی گرافیتی به طول داخلی 16 cm و عرض داخلی 20 mm ریخته شد. البته بوته ابتدا به ترتیب با کف صابون، اسید، الکل شسته، و به مدت یک ساعت در اولتراسونیک قرار داده شد. سپس مواد

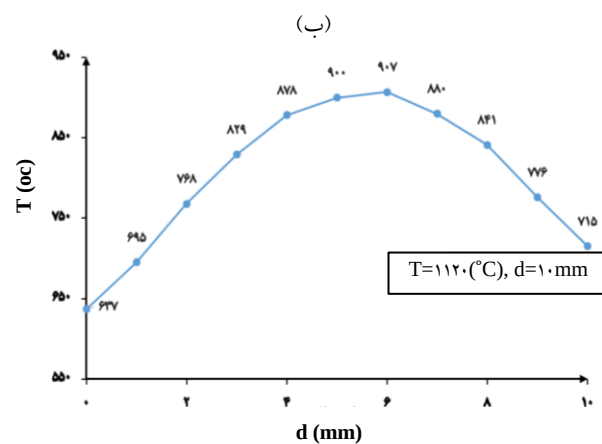
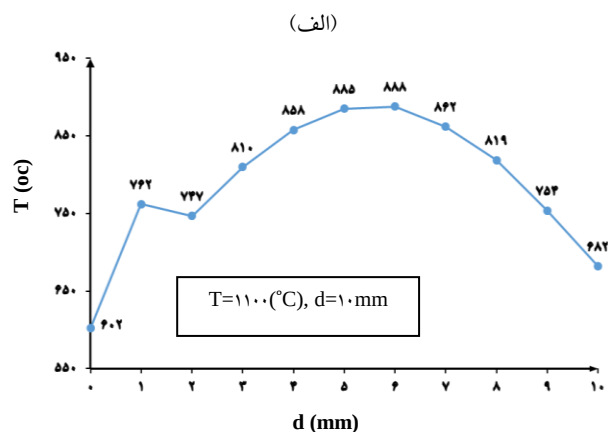


(ج)



شکل ۵. الف) تخریب لوله با بخارهای LiF، ب) بوته گرافیتی و درپوش ساخته شده، ج) بوته‌ی گداخته هنگام برگشت کوره.

به ترتیب محصول خروجی را بعد از ۷، ۹ و ۱۴ بار عبور کوره نشان می‌دهد.



شکل ۴. تغییرات دما نسبت به فاصله از ابتدای ترموکوپل در کوره‌ی، الف) با دمای 1100°C ، ب) با دمای 1120°C .

(الف)



(ب)

(الف)



(ب)



دهند. جداول ۱، ۲ و ۳ به ترتیب نتایج آنالیز ICP آزمایش‌ها را نشان می‌دهند. با تبدیل واحد گرم به مول، نمودارهای مربوط به هر آزمایش رسم شد. همان‌طور که از شکل ۷ مشخص است، هرچه به سمت انتهای نمونه پیش می‌رویم، غلظت آهن افزایش می‌یابد که شیب این افزایش از قسمت ۳ به ۴ چشم‌گیر است. زیرا همان‌طور که در مقدمه اشاره شد با هر بار عبور کوره از نمونه، ناخالصی‌ها به سمت انتها پیش می‌روند. کم‌ترین غلظت آهن در شکل ۷. ب، برابر است با $10^{-6} \times 0.4$ مول درصد که نشان می‌دهد بهترین خالص‌سازی بعد از ۹ بار عبور کوره اتفاق افتاده است. بنابراین با امکانات و تجهیزاتی که در اختیار بود بیش‌تر از ۹ بار نتیجه‌ی بهتری حاصل نمی‌شود. این محدودیت‌ها به دلایل زیر است؛

۱. در اختیار نداشتن لوله‌ی کوارتز با کیفیت بهتر، به طوری که در شکل ۵. الف نیز مشخص شده است. لوله کوارتز بی‌کیفیت با بخارهای ناشی از LiF واکنش داده و از بین رفته و به احتمال زیاد سبب ورود آلودگی و ناخالصی‌های بیش‌تر به نمونه شده است. در این حالت با وجود ساخت درپوش بر روی نمونه، ورود آلودگی به نمونه اجتناب‌ناپذیر است.

۲. بوته‌ی مناسب برای این منظور بوته‌ای از جنس پلاتین یا کوارتز با کیفیت بالا است. استفاده از بوته‌ی گرافیتی و اکسید شدن آن به علت مناسب نبودن شرایط پمپ خلأ، ناخالصی‌های دیگری را به محیط آزمایش وارد می‌کند، که در نهایت سبب شده است آزمایش پس از ۹ بار عبور کوره از نمونه از شرایط مطلوب اولیه خارج شود. البته نتایج مربوط به آزمایش ۹ بار و ۱۴ بار به یک‌دیگر نزدیک‌اند و این خود نشان‌دهنده‌ی آن است که با وجود روش انتخابی صحیح، ولی با استفاده از امکانات موجود امکان خالص‌سازی بیش‌تر فراهم نیست. در شکل ۸ کم‌ترین غلظت آهن در ۳ آزمایش صورت گرفته با غلظت اولیه آهن مقایسه شده‌اند.

همان‌طور که از نمودار مشخص است، بهترین نتیجه پس از ۹ بار عبور کوره از مواد اولیه به دست آمده است که غلظت آهن نسبت به پودر اولیه حدود ۱۱ برابر کاهش یافته است. شکل ۹ تغییرات غلظت باریم را در سه آزمایش نشان می‌دهند. همان‌طور که نشان داده شده است، هر چه به سمت



(ج)



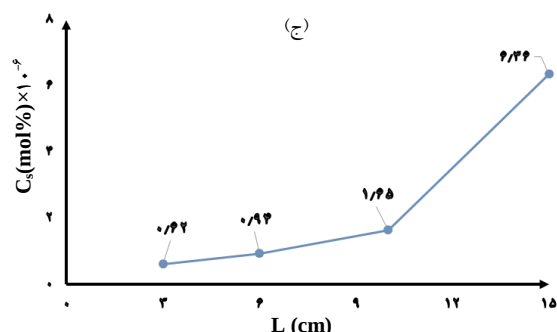
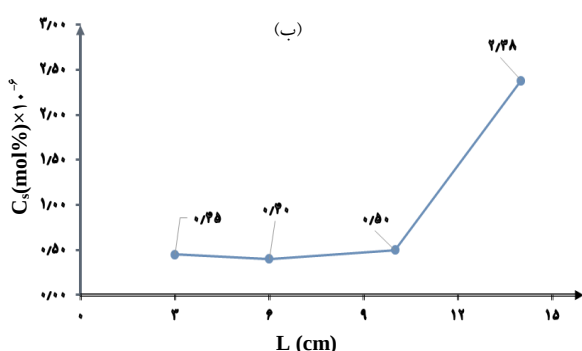
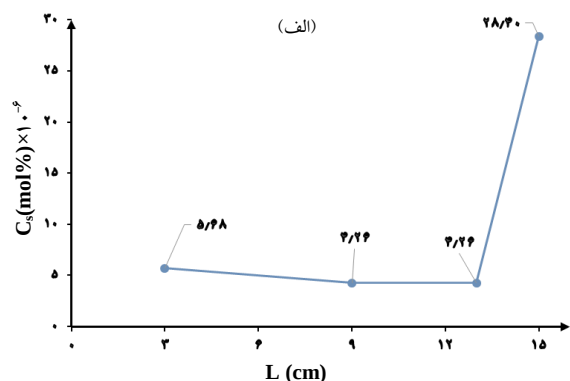
شکل ۶. بلور LiF، الف) بعد از ۷ بار، ب) بعد از ۹ بار، ج) بعد از ۱۴ بار عبور کوره در طول نمونه.

۴. بحث و نتایج

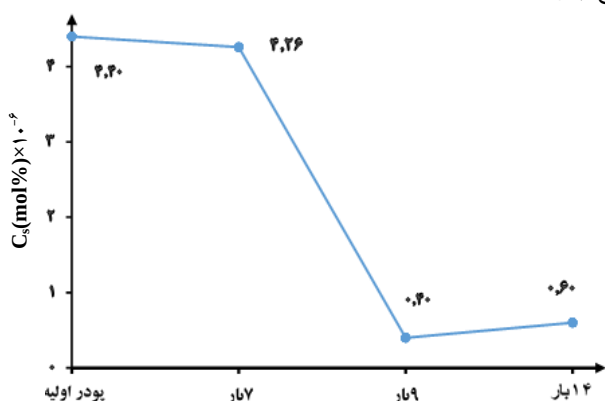
بعد اتمام کار، نمونه‌ها از بوته‌ی گرافیتی بیرون آورده و برای برش با دستگاه آماده شدند. تقریباً نیمی از هر سه نمونه شفاف بود. ولی در نقاطی از نمونه‌ها نیز قسمت‌های کدر کوچک (مانند تکه‌های ابر) دیده شد. قسمت‌های پایانی هر سه نمونه نیز سیاه بود. بنابراین چهار برش از قسمت‌ها مختلف نمونه شامل قسمت شفاف اولیه (ابتدای نمونه، شماره ۱)، قسمت شفاف بعدی (با فاصله ۶ تا ۹ cm از ابتدای نمونه، شماره ۲)، نواحی ابری (شماره ۳) و در نهایت قسمت سیاه پایانی (شماره ۴) تهیه، و بعد از کدگذاری، برای آنالیز ICP به آزمایشگاه فرستاده شدند. در هر کد نمونه، عدد سمت راست نشان‌دهنده‌ی تعداد عبور کوره از نمونه، و عدد سمت چپ یکی از چهار برش از نمونه را نشان می‌دهد.



۷	۴-۱۴	Ba	۱/۹
۸	۴-۱۴	Fe	۲۲/۴



شکل ۷. نمودار تغییرات غلظت آهن، الف) پس از ۷ بار، ب) پس از ۹ بار، ج) پس از ۱۴ بار عبور کوره در طول نمونه.



انتهای نمونه‌ها پیش می‌رویم، غلظت باریم نیز مانند غلظت آهن افزایش می‌یابد و نمونه‌ای که ۹ بار خالص‌سازی شده است، بهترین نتیجه را نشان می‌دهد. البته در شکل ۹. ب یک افزایش غلظت در میانه‌ی نمونه دیده می‌شود که به احتمال زیاد به علت تشکیل کربنات باریم در نمونه است و در شکل ۱ نیز نقاط ابری دیده شده می‌شود. همان‌طور که از نمودارها مشخص است، کاهش بیش‌تری در غلظت باریم نسبت به آهن مشاهده می‌شود، بنابراین خالص‌سازی باریم موفقیت‌آمیزتر از آهن بوده است.

جدول ۱. نتایج آنالیز ICP مربوط به آزمایش ۷ بار عبور کوره

ردیف	کد نمونه	موضوع آزمایش	نتیجه (μg/g)
۱	۱-۷	Ba	۲/۵
۲	۱-۷	Fe	۲۰
۳	۲-۷	Ba	۳/۵
۴	۲-۷	Fe	۱۵
۵	۳-۷	Ba	۳/۵
۶	۳-۷	Fe	۱۵
۷	۴-۷	Ba	۱۹۰
۸	۴-۷	Fe	۱۰۰

جدول ۲. نتایج آنالیز ICP مربوط به آزمایش ۹ بار عبور کوره

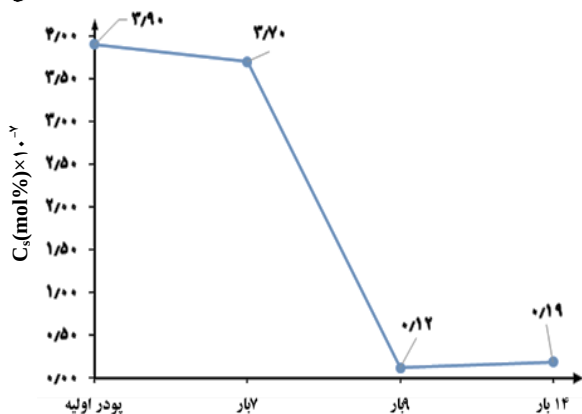
ردیف	کد نمونه	موضوع آزمایش	نتیجه (μg/g)
۱	۱-۹	Ba	۰/۰۸۵
۲	۱-۹	Fe	۱/۶
۳	۲-۹	Ba	۰/۰۹
۴	۲-۹	Fe	۱/۴
۵	۳-۹	Ba	۰/۱۳
۶	۳-۹	Fe	۱/۸
۷	۴-۹	Ba	۰/۱۰
۸	۴-۹	Fe	۸/۴

جدول ۳. نتایج آنالیز ICP مربوط به آزمایش ۱۴ بار عبور کوره

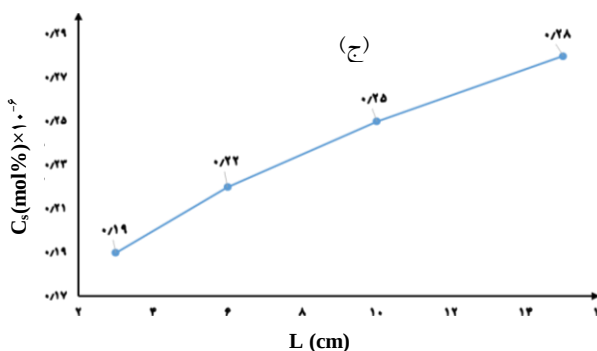
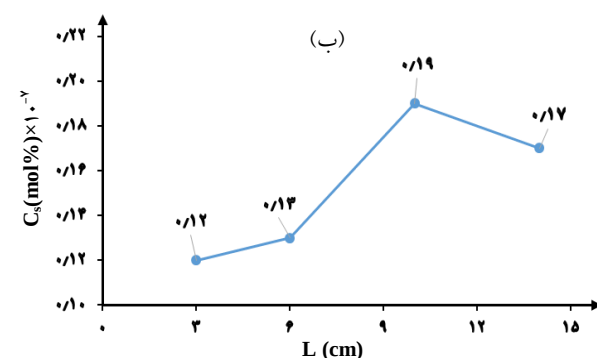
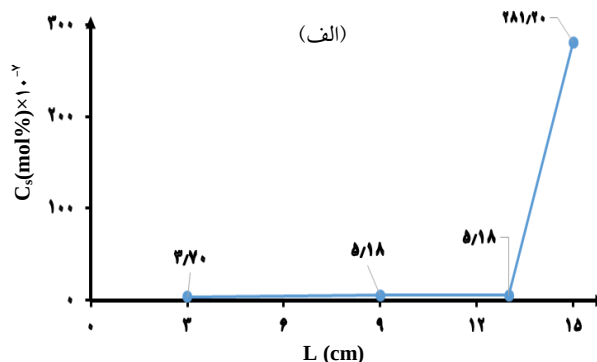
ردیف	کد نمونه	موضوع آزمایش	نتیجه (μg/g)
۱	۱-۱۴	Ba	۱/۳
۲	۱-۱۴	Fe	۲/۲
۳	۲-۱۴	Ba	۱/۵
۴	۲-۱۴	Fe	۳/۳
۵	۳-۱۴	Ba	۱/۷
۶	۳-۱۴	Fe	۱/۶۵



شکل ۸. مقایسه‌ی کم‌ترین غلظت آهن در آزمایش‌های مختلف با غلظت آهن در پودر اولیه.



شکل ۱۰. مقایسه‌ی کم‌ترین غلظت باریم در آزمایش‌های مختلف با غلظت باریم در پودر اولیه.



شکل ۹. نمودار تغییرات غلظت باریم، الف) پس از ۷ بار، ب) پس از ۹ بار، ج) پس از ۱۴ بار عبور کوره در طول نمونه.

در شکل ۱۰ کم‌ترین غلظت باریم در ۳ آزمایش صورت گرفته با غلظت اولیه‌ی باریم مقایسه شده‌اند. همان‌طور که از نمودار مشخص است، بهترین نتیجه پس از ۹ بار عبور کوره از مواد اولیه به دست آمده است که غلظت باریم نسبت به پودر اولیه حدود ۳۲ برابر کاهش یافته است.

۵. نتیجه‌گیری

دستگاه خالص‌سازی منطقه‌ای در آزمایشگاه رشد بلور طراحی و ساخته و بهینه‌سازی شد. بهترین نتیجه پس از ۹ بار خالص‌سازی، حدود ۱۱ برابر برای آهن، و ۳۲ برابر برای باریم به دست آمد. علاوه بر این، نتایج ۹ بار خالص‌سازی نسبت به ۱۴ بار خالص‌سازی به علت پایین بودن کیفیت تجهیزات آزمایشگاهی بهتر بوده است.

مراجع

[1] D.S. Prasad, N.R. Munirathnam, J.V. Rao, T.L. Prakash, Effect of multi-pass, zone length and translation rate on impurity segregation during zone refining of tellurium, *J. Mat. Lett.* **60** (2006) 1875–1879.

[2] Jordan Haas, Development of horizontal zone refiner for optimization studies, *Master of applied science* (2002).



- [7] Mohamad Roumie, Khaled Zahraman, Abdallah Zaiour, Yasser Mohanna, Makram Hage-Ali, Study of segregation process of impurities in molten tellurium after one Pass of three conjoint zones in zone refining, *J. Cryst. Growth* **289** (2006) 260–268.
- [8] H. Eyring, The activated complex in chemical reactions, *J. Chem. Phys.* **3** (1935) 107.
- [9] A. Cornet, P. Siffert, A. Coci-ic, Improvements in the purification of Cadmium Telluride by zone refining, *J. Cryst. Growth* **7** (1970) 329–332.
- [3] F.G. Herington, Zone refining as a purification tool, *Annals New York Academy of Sciences* (1998) 63–71.
- [4] Noe' Cheung, Rodnei Bertazzoli, Amauri Garcia, Experimental impurity segregation and numerical analysis based on variable solute distribution coefficients during multi-pass zone refining of aluminum, *J. Cryst. Growth* **310** (2008) 1274–1280.
- [5] J.C. Brice, Crystal growth processes. John Wiley and Sons (1986).
- [6] K. Ghosh a, V.N. Mani, S. Dhar, Numerical study and experimental investigation of zone refining in ultra-high purification of gallium and its use in the growth of GaAs epitaxial layers, *J. Cryst. Growth* **311** (2009) 1521–1528.