

高温氧化物熔体中表面张力对流效应研究实验*

刘照华 金蔚青 潘志雷 程 宁
(中国科学院上海硅酸盐研究所 上海 200050)

摘 要

利用高温实时光学观察方法,实时地观察了高温氧化物熔体中的表面张力对流效应.稳态的热毛细对流流线呈轴对称形式,非稳态的热毛细涡流运动伴随熔液温度呈周期性变化,同时还观察到另一种由熔体自由表面的弯月面曲率的变化引起的非稳态的热毛细对流现象.最后测定了相对熔液温度下非稳态热毛细对流的振荡频率.

关 键 词 表面张力对流,氧化物熔体,实时观察
分 类 号 O 78

1 引言

从熔体中生长氧化物晶体是一种重要的晶体生长技术,而熔体中的流体运动会造成熔体组份上的变化,对生长的晶体质量有巨大的影响.晶体生长过程中始终存在自由表面的液面,这样就不可避免地产生表面张力对流,而表面张力引起的对流在微重力环境下对晶体生长是至关重要的,要充分利用微重力环境下生长晶体的优势,就必须充分了解表面张力对流的本质.过去有些科学工作者对透明的液体诸如酒精^[1,2]、硝酸钠溶液^[3,4]、十六烷^[5]等进行了表面张力实验,但其中很少人对表面张力对流的效应进行研究.本实验的目的就是利用实验室所建立的高温实时观察法^[6],观察高温氧化物熔体中稳态和非稳态热毛细对流的现象.

2 实验

晶体的生长和观察系统见参考资料[5],该设备结合休伦和微分干涉显微镜技术,用于观察熔体中稳态和非稳态的热毛细对流.图1为该装置的晶体生长室示意图,在铜铸的炉膛内,装有用 $\phi 0.1\sim 0.2\text{mm}$ 的铂金丝绕成 $\phi 2.5\text{mm}$ 的环状铂金坩埚.由表面张力的作用在该环的表面形成一层薄平的熔体膜样品.炉体在 1100°C 时,1h内其稳定度 $< \pm 0.5^\circ\text{C}$.

3 结果与讨论

3.1 熔体中稳定热毛细对流的观察

$\Delta T=130^\circ\text{C}$ 左右时,由 KNbO_3 熔体内成核微晶($\phi 10\mu\text{m}$ 左右)的运动,可明显地观察到熔液内稳态热毛细对流的流线,见图2.

这种流线与我们实验室所观察到的浮力对流^[7]的类型完全不同.稳态的热毛细对流的轴对称图形,这些环形的对流圈线分布在坩埚的一侧,而在坩埚的另一侧呈现它的镜面对称图形.此流线图形非常类似由Chanh和Wilcon^[8,9]所模拟计算的热毛细对流形状.

* 1997-01-06 收到初稿, 1997-03-19 收到修改稿

在自由表面层内, 表面张力对流由坩埚边缘的热端(图 2 中 H 表示) 流向坩埚中心的冷端(图 2 中 C 表示). 这些事实表明: 在熔液的自由表面层内, 由于表面张力的不平衡, 它驱动了低表面张力区(热端) 向高表面张力区(冷端) 移动.

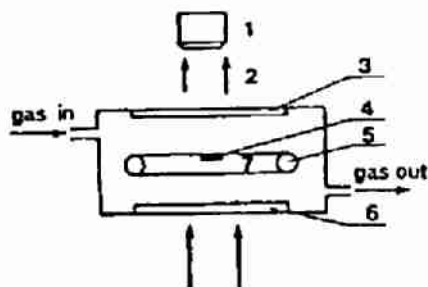


图 1 微型浮法区域生长室略图

Fig.1 Schematic figure of the micro-floating-zone growth cell

1. Object lens, 2. Parallel lights, 3. Quartz window, 4. Seed crystal, 5. Crucible, 6. Quartz window, 7. Melt

3.2 非稳态热毛细对流的实验

使用 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(80\text{wt}\%) + \text{KNbO}_3(20\text{wt}\%)$ 的混合物实验, 可以观察到熔液中非稳态表面张力对流的现象. 实验中, 我们逐渐提高坩埚中心与边缘的温度差. 在较大 ΔT 的情况下,

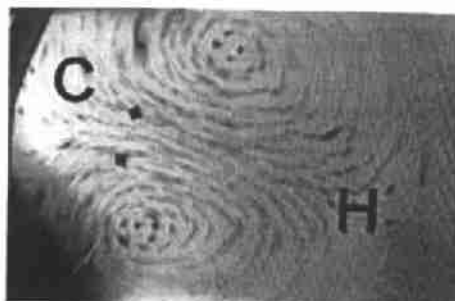


图 2 KNbO_3 熔体中稳态热毛细对流流线

Fig.2 The streamlines of the steady thermocapillary convection in KNbO_3 melt

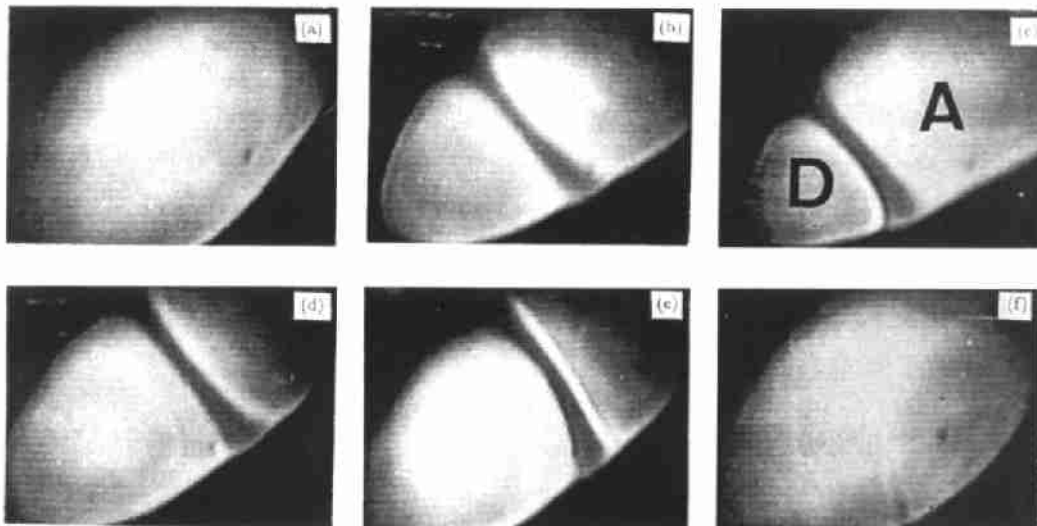


图 3 一个周期交替变化的热毛细涡流振荡运动

Fig.3 A periodical interchange of the oscillation of thermocapillary vortex

可以观察到热毛细涡流的振荡运动, 同时熔液温度伴随相同频率的周期性变化. 这种非稳态热毛细对流的图形不是轴对称的. 图 3 显示了坩埚中心和边缘涡流形状呈周期性交替变化的情况. 图 3(a) 箭头所示在表面张力梯度的作用下, 驱动了由坩埚边缘处流向坩埚中心的快速表面流. 图 3(b) 表明这种振荡现象不同于稳态的情形, 不能观察到典型的镰刀状回流, 仅有圈状线内产生横截面畸变形成二个面积相仿的涡流来表示. 图 3(c) 显示了这种横截

面的畸变位置逐渐由对称处向坩埚中心处的低温区移动. 涡流 A 与坩埚边缘的热端相近, 面积较大. 而涡流 D 与坩埚中心的冷端相近, 面积较小. 横截面畸变位置的移动速率决定了振荡频率. 图 3(d)~(e) 表明一个振荡的后半周期.

在实验中, 还建立了振荡周期与熔液温度波动的对应关系. 图 4 显示了非稳态热毛细对流的振荡频率与熔液温度波动的对应关系, 也表明了图 3 所显示的涡流形状大小交替变化的情况.

根据热毛细对流的性质, 显然非稳态热毛细对流是由坩埚内熔液自由表面的温度波动而引起的. 当熔体的厚度减薄至 $0.1 \sim 0.2 \text{ mm}$, 且其平整度降低时, 另一种非稳态热毛细对流效应也可明显观察到. 通常从稳态到非稳态热毛细对流的突变点就是临界 Marangoni 数. 实验中, 此突变点主要依赖于熔体自由表面弯月面曲率的变化. 当弯月面曲率足够大时, 就可观察到热毛细对流的振荡现象. 图 5 表明了一个周期性振荡回流运动的情况, 这就是熔体中单一非轴对称圈状线.

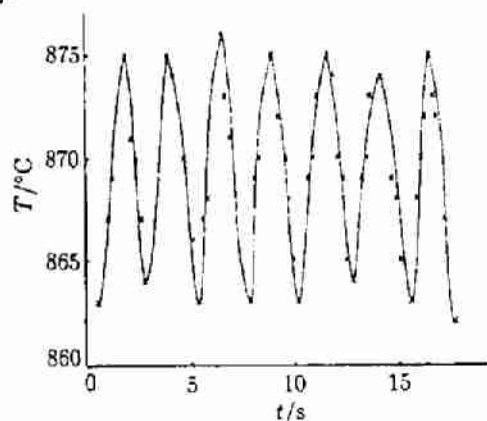


图 4 伴随热毛细涡流振荡运动温度扰动的基本模式

Fig.4 The basic mode of the temperature perturbation accompanying an oscillatory motion of thermocapillary vortex

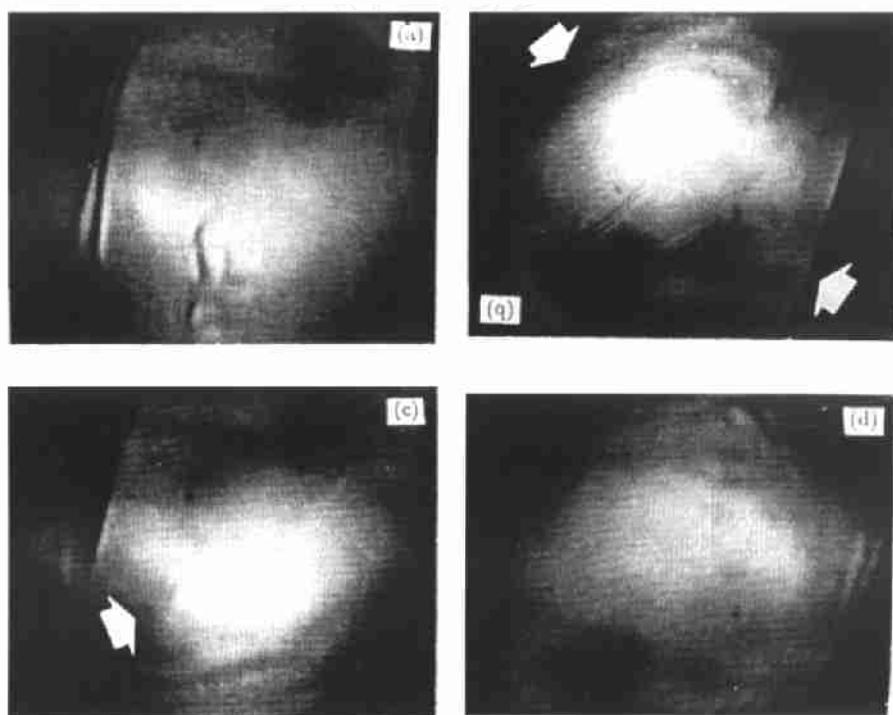


图 5 另一种主要由熔体中自由表面弯月面曲率变化所决定的非稳态热毛细对流

Fig.5 Another type of the OTC mainly caused by the variation of the curvature of meniscus of the melt free surface

表面液压同弯月面曲率一样被认为能够影响流体运动. 界面层的压力与自由表面形状相对应的, 压力是由回流的主要部分决定的. 正如图 5(a) 所示表面流从弯月面中心开始. 但与图 2 显示的稳态热毛细对流相比较, 值得注意的是其镰刀状的回流消失了, 且仅在足

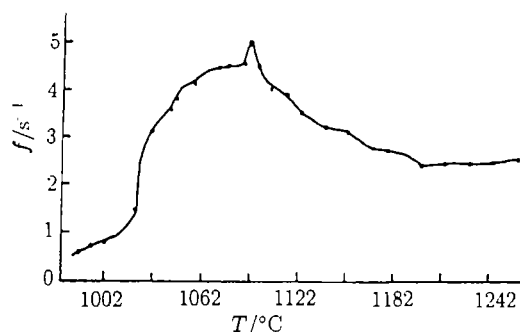


图 6 熔体中温度与对流的振荡频率的关系
Fig.6 The oscillatory frequency of the convection against the temperature of the melt

足够的压力梯度引起某一表面形变后回流才出现, 见图 5(b) 箭头所示. 在 0.04s 后, 强的环形回流形成, 且表面流消失, 见图 5(c) 箭头所示. 此后可清楚地看到中断的回流, 且表面流又重新出现, 见图 5(d). 滞后的时间和自由表面的曲率是有关的. 最后, 一来自弯月面中心的快速表面流又重复原过程, 导致下一个周期性的振荡运动. 我们测量了熔液温度与相对应的热毛细对流振荡频率的关系. 如图 6 所示, 随着熔液温度 T 的增加, 振荡频率 f 也增加, 但达到最大振荡频率后, 随着温度 T 的上升, 振荡频率 f 反而下降, 这与振荡效应有一定的关系. 本实验还表明, 在熔体中非稳态热毛细对流的接近 KNbO_3 熔点时, 振荡频率达到最大值.

参 考 文 献

- 1 Chun Ch-H, Wuest W. *Acta Astronaut.*, 1979, **6**: 1073-1079
- 2 Wuest W, Chun Ch-H. *COSPAR Space Research.*, 1979, **19**: 559-563
- 3 Schwabe D, Scharmann A, Preisser F, et al. *J. Crystal Growth.*, 1978, **43**: 305-312
- 4 Schwabe D, Scharmann A. *J. Crystal Growth.*, 1979, **46**: 125-131
- 5 Kanotani Y, Ostrach S, Vargas M. *J. Crystal Growth.*, 1984, **66**: 83-90
- 6 Jin W Q, Chen J Y, Li W S, et al. *Ferroelectrics.*, 1993, **142**: 13-18
- 7 Jin W Q, Chen J Y, Li W S. *Microgravity Q.*, 1993, **3**: 129-133
- 8 Chang Ch E, Wilcox W R. *J. Crystal Growth.*, 1975, **28**: 8-17
- 9 Chang Ch E, Wilcox W R. *Int. J. Heat Mass Transfer.*, 1976, **19**: 355-362

Experiments on Surface Tension Driven Flow in High Temperature Oxide Melt

LIU Zhao-Hua JIN Wei-Qing PAN Zhi-Lei Cheng Ning

(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences Shanghai 200050 China)

Abstract

Surface tension driven flow in high temperature oxide melt was visualized by means of the already proved method of high temperature in situ optical observation. The streamlines of the steady thermocapillary convection were marked in the form of an axially symmetric pattern. The oscillation motion of thermocapillary vortex was observed accompanied by synchronous temperature oscillations. Another type of oscillation thermocapillary convection was also observed mainly caused by the variation of the curvature of meniscus of the melt free surface. Finally the oscillatory frequency of the convection against the temperature of the melt was measured.

Key words surface tension driven flow, oxidemelt, in situ observation