

基于气动悬浮激光加热技术 YAG 熔体高温热物理性能评测

丰盛¹, 单志涛¹, 潘瑞琨¹, 徐博², 祖成奎², 陶海征¹

(1. 武汉理工大学 硅酸盐建筑材料国家重点实验室, 武汉 430070; 2. 中国建筑材料科学研究总院有限公司, 北京 100024)

摘要: 钇铝石榴石 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (Yttrium Aluminum Garnet, 简记为 YAG) 材料具有优异的光、热和电学性能, 引起了广泛关注。但高熔点和冷却过程中复杂的相选择机制, 使 YAG 熔体特别是熔点以下过冷区内的热物理性能参数获得困难。利用自主搭建的气动悬浮无容器激光加热装置, 基于受迫振动和光学描影等原理, 在 1750~2650 K 宽达 900 K 的温区内, 评测了 YAG 熔体的黏度、表面张力和密度。研究表明, 与 Al_2O_3 熔体相比, YAG 熔体密度具有更高的温度敏感性, 具有高约 1 倍的平均线膨胀系数; 不同于表面张力随温度变化不敏感的 Al_2O_3 熔体, YAG 熔体的表面张力随温度升高产生略微降低; 与 Al_2O_3 熔体的黏温关系相比, 在熔点以下的过冷区内发现 YAG 熔体具有更陡峭的黏温变化趋势。

关键词: 高温热物理性质; YAG; 气动悬浮技术; 过冷区

中图分类号: TQ171 文献标识码: A

Thermo-physical Property of YAG Melt Measured by Aerodynamic Levitation Technique

FENG Sheng¹, SHAN Zhi-Tao¹, PAN Rui-Kun¹, XU Bo², ZU Cheng-Kui², TAO Hai-Zheng¹

(1. State Key Laboratory of Silicate Materials for Architectures, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China; 2. China Building Material Academy, Beijing 100024, China)

Abstract: As one of the most widely used oxide in many fields, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG: Yttrium Aluminum Garnet) has attracted extensive attention. However, due to its high melting point and complex mechanism for phase selection, accurate knowledge of thermo-physical properties for YAG melt, is much desired. Using an advanced aerodynamic levitation laser-melting technique, here the viscosity, surface tension and density were carefully evaluated on both thermodynamically stable, and metastable supercooled YAG melts in the temperature scope from 1750 K to 2650 K. The results indicate that density of YAG melts has a higher sensitivity than that of Al_2O_3 melts upon temperature change; and YAG melts have one time higher average line thermal expansion coefficient compared to the Al_2O_3 melts. Al_2O_3 melts' surface tension is almost constant on temperature in the wide temperature scope, while YAG melts have a distinct decrease in surface tension following temperature increase. As to the viscosity-temperature relation, in the supercooled scope, YAG melts have a more obvious rise in viscosity upon cooling.

Key words: thermo-physical property; yttrium aluminum garnet; aerodynamic levitation technique; supercooled region

自 1994 年 Aasland 和 Mcmillan^[1]在 Y_2O_3 含量为 0.24wt%~0.32wt% 组成范围内成功制备了 $(\text{Y}_2\text{O}_3)_x-(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ 玻璃后, 钇铝酸盐系统逐渐引起了广泛关注。其中钇铝石榴石 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (Yttrium Alu-

收稿日期: 2018-03-07; 收到修改稿日期: 2018-05-14

基金项目: 国家自然科学基金(51772223); 湖北省重大专项项目(2016AAA029)

National Natural Science Foundation of China (51772223); Major Project of Hubei Province (2016AAA029)

作者简介: 丰盛(1994-), 男, 硕士研究生. E-mail: fancy_fs@whut.edu.cn

通讯作者: 陶海征, 教授. E-mail: thz@whut.edu.cn

minum Garnet, 简记为 YAG)在诸多领域有着重要应用, 其晶体、微晶玻璃和荧光粉都得到广泛研究^[2-7]。但是, 对其高温熔体的热物理性能参数却鲜有报道, 而熔融状态又是一个非常重要的工业过程。

利用传统高温炉探究熔体性质非常困难, 主要原因是高温熔体与容器的物理接触会污染甚至改变熔体结构性质, 这就推动了悬浮技术的发展。悬浮技术既能避免样品与容器之间的接触, 使得样品被加热到极高温并易于控制; 还能有效抑制异质成核析晶, 进而探究熔体在深过冷区(低于平衡熔点几百摄氏度)的性质。随着科技的发展, 已经有多种方法来实现无容器探测熔体性质, 如电磁悬浮(Electromagnetic levitation)^[8]、静电悬浮(Electrostatic levitation)^[9]、气膜悬浮(Gas-film levitation)^[10]、超声悬浮(Acoustic levitation)^[11]和气动悬浮(Aerodynamic levitation)^[12-14]等。气动悬浮技术由于其结构的诸多优势, 而被广泛用于探究材料的热物理性能。

本研究利用气动悬浮无容器激光加热技术, 制备出 YAG 玻璃样品, 并研究了熔体在高温平衡液态和过冷状态下的密度、表面张力和黏度特性。

1 实验方法

1.1 气动悬浮激光加热装置

实验使用的气动悬浮激光加热装置, 由武汉理工大学极端玻璃态实验室与英国 Aberystwyth University 联合研制和搭建, 装置示意图如图 1 所示。装置主要包括激光加热系统、悬浮供气系统、监测摄像系统、温度测量系统以及声激励系统。激光加热系统包括两台波长为 $10.6\ \mu\text{m}$, 最大功率分别为 80 W(顶部)和 40 W(底部)的 CO_2 激光器; 通过封闭在金属导管内的透镜组, 汇聚成一束直径约 $1\ \text{mm}$ 的光束照射到样品中心位置。温度测量系统包括双色高温计(工作波长为 $0.8\ \mu\text{m}$ 和 $1.05\ \mu\text{m}$, 测温范围为 $1500\sim 3300\ ^\circ\text{C}$)和高速高温计(工作波长为 $1.4\sim 1.58\ \mu\text{m}$, 测温范围为 $1500\sim 3500\ ^\circ\text{C}$), 可以实时测定样品表面温度并经 A/D 转换器读入到计算机系统。基于气体动力学原理, 利用独特设计的喷嘴装置和合适的气体流量控制可实现球形样品的稳定悬浮。通过声激励方法将振动耦合到供气系统, 可使悬浮熔体在设定频率下产生受迫振动。为了降低利用样

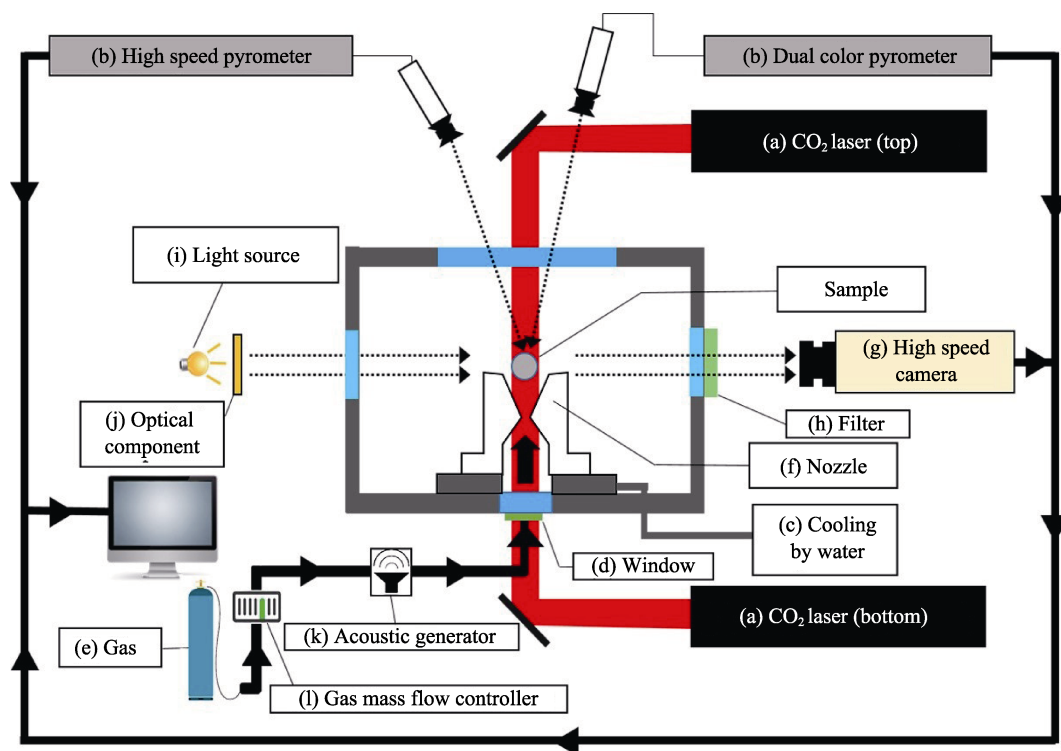


图 1 气动悬浮无容器热物理性能评测装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of aerodynamic levitator for evaluating thermophysical properties of melts
(a) Top and bottom laser sources; (b) Dual color pyrometer and high speed pyrometer; (c) Water-cooled levitation stage;
(d) Infrared transparent window separating the levitation gas from the bottom laser; (e) Inlet for levitation gas;
(f) Aerodynamic conical converging-diverging levitator nozzle; (g) High speed camera (maximum frame rate 6250 fps; the frame rate for our measurement being set to be 2000 fps); (h) Bandpass filter with 10 nm (FWHM) centered around 532 nm; (i) Back lighting laser source with a wavelength of 532 nm; (j) Beam expanding optics; (k) Acoustic excitation device; (l) Gas mass flow controller

品高温自发光成像方法提取的尺寸与实际样品尺寸的偏差, 借鉴电磁悬浮方法采用的光学描影技术^[15], 利用高强度冷光灯源(功率为 200 mW, 波长为 532 nm)、平行光束发生装置、带通滤波片(中心波长为 532 nm, FWHM 为 10 nm)和高速摄像机(帧频 ≤ 6250 fps, 本实验中采用的帧频为 2000 fps, 分辨率为 1920×1080)获取样品更精确的投影像。

1.2 样品制备

按 $Y_3Al_5O_{12}$ 化学计量比, 称量 Al_2O_3 和 Y_2O_3 粉料(纯度均为 99.99wt%), 倒入 PVA 溶液(聚乙烯醇 1799 型, 质量比 PVA:H₂O=1:10)中。利用磁力搅拌器(400 r/min)室温下搅拌 24 h, 使粉料均匀分散。然后在 700℃ 下焙烧 2 h, 经研磨后压制成 $\phi 25$ mm×2 mm 的圆片。再经过 1200℃ 焙烧 2 h, 彻底去除挥发性有机物。

将圆片切割成质量约 15 mg 的小块, 置于悬浮台上, 利用激光加热使小块预熔成球状; 然后更换悬浮喷嘴, 调节气体(99.999%的高纯氩气)流量使样品稳定悬浮; 调节上下激光功率, 使样品完全熔融并保持 30 s 左右, 使熔体中物质混合均匀。通过关闭激光快速淬冷 YAG 熔体, 冷却速率可达 550 K/s。淬冷曲线上没有出现放热峰(图 2), 说明获得的直径约 2 mm 的小球为玻璃态^[16-17]。进一步的综合热分析(升温速率 20 K/min)表明制备的玻璃样品的玻璃转变温度 T_g 为 1153 K^[18-19](图 2 插图)。

1.3 高温熔体的热物理性能评测原理

由于表面张力和重力的作用, 高温熔体一般呈近似球状的椭球形。由于熔体的底部被喷嘴遮挡, 整体轮廓需利用图像处理程序进行重构(图 3)。选择包含熔体阴影边缘可见部分的环形区域, 用计算机软件根据边缘检测算法等程序, 从环形中心沿径向, 以 5° 间隔获取若干边缘点并进行图形重构。利用重构的椭圆投影, 确定其中心位置、长轴(红色)和短轴

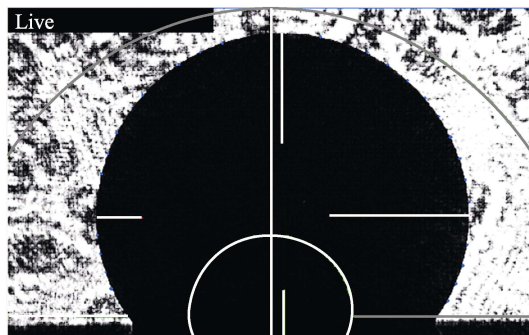


图 3 熔体在一定温度下的实时图像

Fig. 3 Typical frame obtained from high speed camera at a certain temperature

The dark hemispherical area is the shadow cast of the melt drop visible above levitation nozzle

(绿色)三个椭圆阴影的描述参数。根据椭球体的体积计算公式获得熔体的密度:

$$\rho = \frac{3M}{4\pi r_M^2 r_m} \quad (1)$$

其中, r_M 和 r_m 分别是长半轴和短半轴的长度, M 为样品室温下的质量。

通过与气路直接耦合的声波发生装置, 将一定频率和振幅的振动传输给高温熔体。物体按固有频率自由振动时, 振幅随时间按正弦或余弦规律变化, 振动的频率仅与物体固有特性有关。因此本实验采用正弦声波作为激发液滴受迫振荡的激励源。

理论研究表明^[12], 若阻尼很小, 液滴作共振振动时, 表面张力 γ 与共振频率 f_0 的平方成正比:

$$\gamma = \frac{3\pi f_0^2 M}{l(l-1)(l+2)} \quad (2)$$

其中 M 是质量, f_0 是共振频率, l 表示振荡模式。在微小振幅的激励下, $l=2$ 模式占主导地位, 因此上式可简化为:

$$\gamma = \frac{3}{8}\pi f_0^2 M \quad (3)$$

熔体在正弦波振动激发下产生受迫振动, 利用高速摄像机, 在一定频率范围内扫描可以得到傅里叶振幅-频率谱。根据振幅最大处的频率确定液滴振动的共振频率, 结合上式从而确定高温熔体的表面张力。当液滴偏离球形和存在旋转时, $l=2$ 模式的共振将分裂成五种子模式($m=0, \pm 1, \pm 2$)。Cumings 等^[20]确定了电磁悬浮中各个子模式下的修正项, 并导出求和规则。Ozawa 等^[21]详细分析了电磁悬浮中液滴在 $m=\pm 2$ 模式下的旋转和振动对获取共振频率的影响, 并描绘了五种子模式的示意图。对于气动悬浮, Langstaff 等^[12]观察到了五种子模式的分裂, 确定了各个子模式的性质, 但目前还没有探索出合理的修

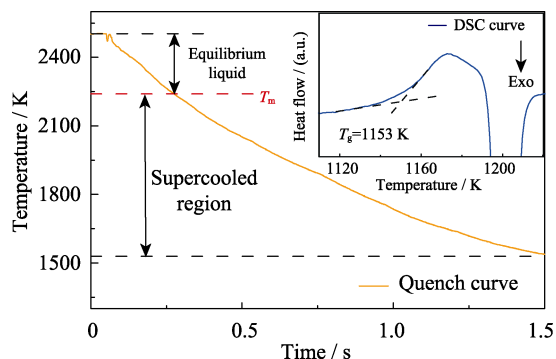


图 2 YAG 熔体淬冷过程表面温度随冷却时间的变化曲线

Fig. 2 Apparent temperature versus time curve for YAG melt As shown in the insert

T_g is characterized from DSC measurement of the sample obtained by quenching

正方法。为了简便和准确起见,本实验采用($l=2$, $m=0$)模式的频率作为共振频率进行计算。

此外,熔体在共振频率下作受迫振动时,撤去激励后,黏度 η 与振荡的衰减系数 Γ 存在如下关系^[12]:

$$\eta = \frac{1}{(l-1)(2l+1)} \frac{3M\Gamma}{4\pi R} \quad (4)$$

其中 R 是振荡液滴的半径, M 是其质量。 $l=2$ 时上式简化为:

$$\eta = \frac{3M\Gamma}{20\pi R} \quad (5)$$

评测时,首先需找到某一温度下熔滴在($l=2$, $m=0$)模式下的频率。在该频率下,使熔滴做受迫共振振动。撤去激励,利用高速摄像机精确记录振幅的衰减过程。最后,根据图像分析其水平半径 r_h 和垂直半径 r_v 的周期演化规律。对于稳态简谐振动,

$$r_{h/v}(t) = A \cdot \sin(2\pi f t) + r_0 \quad (6)$$

其中 A 是液滴振动的振幅, f 是振动频率, r_0 是液滴静止时的平均半径。而对于阻尼衰减振动,

$$r_{h/v}(t) = A \cdot \exp[-\Gamma(t-t_0)] \cdot \sin(2\pi f_0 t) + r_0 \quad (7)$$

f_0 是液滴的共振频率, t_0 是衰减开始的时间, Γ 是衰减常数。通过拟合(7)式可求得 Γ 值,结合(5)式即可获得该温度下熔体的黏度。

2 结果与讨论

2.1 密度

利用气动悬浮方法测量熔体密度过程中,通过室温下电子天平称量获得样品的质量,根据样品测量前后质量对比,发现样品质量损失小于 1%。此外,根据高速摄像机和图像重构获得熔体的几何参数,结合前面获得的质量损失数据,依据密度的计算公式(1),可推算出密度测量产生的实验误差约为 2%。

图 4 显示了 YAG 熔体在 2900~1850 K 温区的密

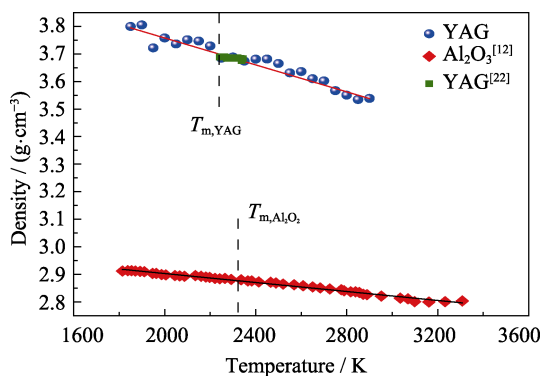


图 4 Al_2O_3 熔体^[12]和 YAG 熔体^[22]密度随温度的变化曲线
Fig. 4 Temperature dependence of density for YAG and Al_2O_3 melts^[12], earlier work is included^[22]

度演化规律。在熔点 $T_{m,\text{YAG}}=2240\text{ K}$ 处^[6],密度约为 3.692 g/cm^3 ,与文献报道的 3.689 g/cm^3 相符^[22]。此外,图 4 还给出了利用气动悬浮技术测得的 Al_2O_3 熔体密度随温度的变化^[12]。与 Al_2O_3 熔体相比,主要是由于 Y 具有更大的原子质量,在同一温度下,YAG 熔体具有更大的密度;在 2900~1850 K 的测试温区,YAG 熔体表现出更大的平均线膨胀系数($\alpha_{\text{YAG}}=2.21\times 10^{-5}\text{ K}^{-1}$ 和 $\alpha_{\text{Al}_2\text{O}_3}=1.00\times 10^{-5}\text{ K}^{-1}$)。

热膨胀,即随温度升高体积增加、密度降低的现象,是凝聚态物质的基本性质。它主要是由于原子间作用力的非谐项引起的原子振动频率随温度改变发生变化引起的^[23]。而热膨胀系数的大小则主要由凝聚态物质的组成化学特性和结构对温度的敏感性决定的。与 Al_2O_3 熔体相比,一方面,引入比 Al-O 键更弱的 Y-O 键将使 YAG 拥有更高的温度敏感性;另一方面,YAG 熔体的结构更加规整,也表现出更高的温度敏感性^[24]。在上述两个因素的共同作用下,YAG 熔体比 Al_2O_3 熔体具有更大的热膨胀系数,即随温度升高,与 Al_2O_3 熔体相比,YAG 熔体的密度表现出更大的下降速率。

2.2 表面张力

图 5 展示了在 2750~1750 K 温度范围内由公式(2)计算得到的表面张力。插图给出了 2550 K 时频率扫描结果,可以看出有一个明显的共振峰,即处于($l=2$, $m=0$)振动模式,中心在 214 Hz。与 Al_2O_3 熔体表面张力随温度变化不敏感不同^[12],YAG 熔体表面张力随温度降低而增大。表面张力是指在一定温度和压力下单位面积的吉布斯自由能,氧化物熔体的表面张力的变化主要与熔体中结构单元的聚合或解聚作用有关^[25]。在温度降低的过程中,YAG 熔体内 Al^{3+} 的平均配位数增大^[24]。因此整个熔体的原子堆积更加紧密,体积能增加,使得表面张力随温度的降低而增大。

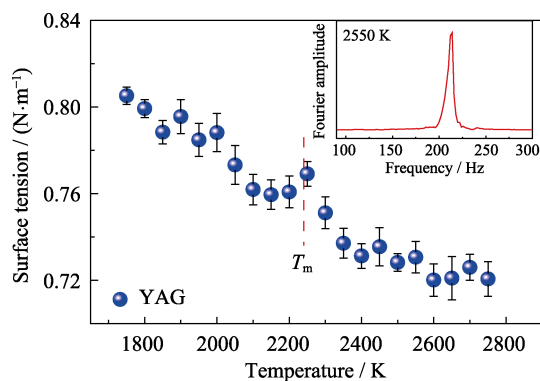


图 5 YAG 熔体表面张力随温度的变化
Fig. 5 Temperature dependence of surface tension for YAG melt
Insert shows the result of frequency sweeping at 2550 K

2.3 黏度

图6(a)展示了YAG熔体自2650 K降温至1750 K过程中黏度的变化,实验误差主要来自于加热时样品挥发引起的质量损失(不超过1%),以及根据振荡衰减曲线(如图6(b))拟合求得的衰减系数 Γ 值,总误差约为5%。从图6(a)可以看出黏度是温度的函数,表现出近Arrhenius关系。在测量温度范围内,黏度变化了一个数量级,熔点 T_m 处熔体黏度约为40 mPa·s。测量的黏度数据与文献[22]基本一致。对比发现,YAG比 Al_2O_3 具有更低的粘度,这可能是由于:高温下引入 Y_2O_3 为 Al^{3+} 离子提供了 O^{2-} ,使得YAG熔体中具有相对更多的 $[\text{AlO}_4]^-$ 结构单元^[6],自由体积相对较大,结构单元的移动相对容易。同时,引入异种金属阳离子降低了结构的对称性。

在测量温度范围内, Al_2O_3 熔体的黏度-温度关系变化并不大。而对于YAG,Weber等^[7]根据从悬浮液滴中拉制光纤的过程,确定在1600~1660 K温度范围内YAG的黏度处于 $3 \times 10^4 \sim 10^5$ mPa·s范围。因此,YAG熔体在熔点以上,黏度随温度变化较为缓慢(在熔点以上400 K,变化约37.5%),而一旦进入过冷区域,黏度随温度的降低急剧变化。黏度与熔体结构密切相关,随着温度的降低,YAG熔体中 Al^{3+}

的平均配位数增加,五六配位的 Al^{3+} 浓度增大^[24],网络的连接程度增加,结构单元的移动变得困难。而在熔点附近, Al^{3+} 配位多面体处于一种在四面体和八面体之间快速转换的状态, Y^{3+} 主要形成八面体,结构中的Al-O四面体和Y-O八面体主要通过桥氧离子形成角连接^[26],网络连接程度迅速增强,结构单元的移动更加困难。

3 结论

基于搭建的新型激光加热气动悬浮装置,可以测量材料在高温平衡液态以及过冷状态下的热物理性能,利用该装置在1750~2650 K宽达900 K的温区内评测了YAG熔体的黏度、表面张力和密度。结果表明,与 Al_2O_3 熔体相比,YAG熔体具有更大的平均线膨胀系数,这可能由于引入了比Al-O键更弱的Y-O键以及YAG熔体中更加规整的结构,使得YAG熔体结构具有更大的温度敏感性。YAG熔体的表面张力随温度升高而减小。在熔点以上,YAG熔体黏度的数值以及随温度的变化与 Al_2O_3 相近,而在过冷区内变化极为迅速,进一步证实熔体结构在熔点附近发生了极大的变化。实验获得的YAG熔体的密度、黏度和表面张力评测结果,为进一步开展YAG性能优化提供了重要的参考依据。

参考文献:

- [1] MCMILLAN P F, AASLAND S. Density-driven liquid-liquid phase separation in the system $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$. *Nature*, 1994, **369**(23): 633-636.
- [2] 马晓光,李建强,彭志坚,等. YAG熔体无容器凝固条件下相选择机制的研究. *稀有金属材料与工程*, 2015, **44**(s1): 60-64.
- [3] XIANG WEI-DONG, ZHAO BIN-YU, LIANG XIAO-JUAN, et al. Packaging technologies and luminescence properties of Ce:YAG single crystal for white light-emitting diode. *Journal of Inorganic Materials*, 2014, **29**(6): 614-620.
- [4] BU CONG-HAO, HE GANG, LI JIANG-TAO. Infrared emission property of (Ca, Cr) co-doped YAG ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2016, **31**(10): 1094-1098.
- [5] GONG M, LIANG X, WANG Y, et al. Novel synthesis and optical characterization of phosphor-converted WLED employing Ce:YAG-doped glass. *Journal of Alloys & Compounds*, 2016, **664**: 125-132.
- [6] WEBER J K R, ABADIE J G, HIXSON A D, et al. Glass formation and polymorphism in rare-earth oxide-aluminum oxide compositions. *Journal of the American Ceramic Society*, 2000, **83**(8): 1868-1872.
- [7] WEBER J K R, FELTEN J J, CHO B, et al. Glass fibres of pure and erbium-or neodymium-doped yttria-alumina compositions. *Nature*, 1998, **393**(6687): 769-771.
- [8] SPITANS S, BAAKE E, JAKOVICS A. New technology for electromagnetic levitation melting of metals. *Applied Mechanics & Materials*, 2014, **698**(1): 237-244.
- [9] LEE J, RODRIGUEZ J E, HYERS R W, et al. Measurement of

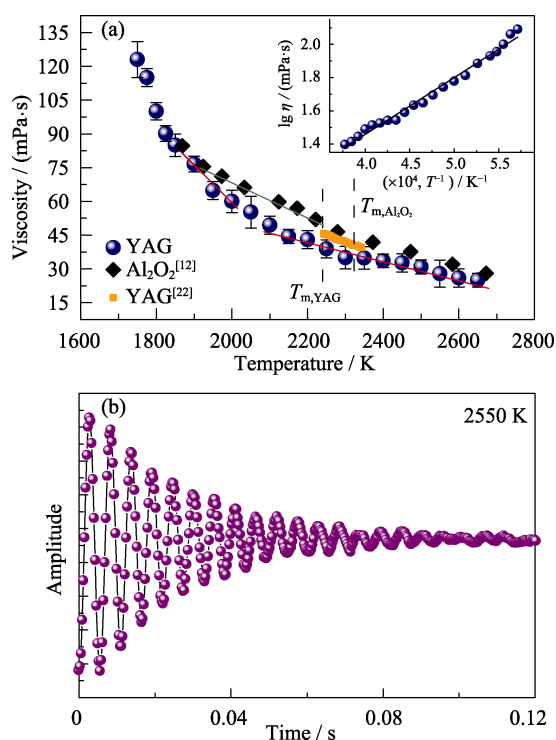


图6 (a)YAG熔体黏度-温度曲线(插图为YAG熔体 $\lg \eta \sim 1/T$ 关系曲线)和(b)2550 K时悬浮液滴受迫振动的振幅随时间的衰减曲线

Fig. 6 (a) Temperature dependence of viscosity for YAG melt (Inset: $\lg \eta$ versus $1/T$ curve for YAG melt) and (b) damping curve according to the recorded radius for YAG melt at 2550 K

- density of Fe-Co alloys using electrostatic levitation. *Metallurgical & Materials Transactions B*, 2015, **46(6)**: 2470–2475.
- [10] GRISHCHENKO D, PILUSO P. Recent progress in the gas-film levitation as a method for thermophysical properties measurements: application to $\text{ZrO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ system. *High Temperatures-High Pressures*, 2011, **40(2)**: 127–149.
- [11] ANDRADE M A B, BERNASSAU A L, ADAMOWSKI J C. Acoustic levitation of a large solid sphere. *Applied Physics Letters*, 2016, **109(4)**: 044101–1–4.
- [12] LANGSTAFF D, GUNN M, GREAVES G N, *et al.* Aerodynamic levitator furnace for measuring thermophysical properties of refractory liquids. *Review of Scientific Instruments*, 2013, **84(12)**: 124901–1–10.
- [13] KARGL F, YUAN C, GREAVES G N. Aerodynamic levitation: thermophysical property measurements of liquid oxides. *International Journal of Microgravity Science and Application*, 2015, **32(2)**: 320212–1–5.
- [14] OHISHI Y, KARGL F, NAKAMORI F, *et al.* Physical properties of core-concrete systems: $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ molten materials measured by aerodynamic levitation. *Journal of Nuclear Materials*, 2017, **487**: 121–127.
- [15] WUNDERLICH R K, FECHT H J, EGRY I, *et al.* Thermophysical properties of a Fe-Cr-Mo alloy in the solid and liquid phase. *Steel Research International*, 2012, **83(1)**: 43–54.
- [16] 岳远征, 袁 政, 陶海征 等. 一种判断玻璃形成的方法. 中国, G01N21/84, CN107228857A. 2017.10.03.
- [17] 陶海征, 钟 鑫, 单志涛. 一种判断熔体能否形成玻璃的方法. 中国, G01N25/14, CN107389724A. 2017.11.24.
- [18] SHAN Z, LI C, TAO H. Mixed alkaline-earth effect on the mechanical and rheological properties of Ca-Mg silicate glasses. *Journal of the American Ceramic Society*, 2017, **100(10)**: 4570–4580.
- [19] QIAO A, TAO H, YUE Y. Sub- T_g enthalpy relaxation in a milling-derived chalcogenide glass. *Journal of the American Ceramic Society*, 2017, **100(3)**: 968–974.
- [20] CUMINGS D. Oscillations of magnetically levitated aspherical droplets. *Journal of Fluid Mechanics*, 1991, **224**: 395–416.
- [21] OZAWA S, KODA T, ADACHI M, *et al.* The influence of temporal phase difference of $m=\pm 2$ oscillations on surface frequency analysis for levitated droplets. *Journal of Applied Physics*, 2009, **106(3)**: 034907–1–7.
- [22] FRATELLO V J, BRANDLE C D. Physical properties of a $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ melt. *Journal of Crystal Growth*, 1993, **128(1–4)**: 1006–1010.
- [23] EVANS J S O, MARY T A, SLEIGHT A W. Negative thermal expansion from 0.3 to 1050 K in zirconium tungstate, ZrW_2O_8 . *Science*, 1996, **272(5258)**: 90–92.
- [24] WEBER J K R, KRISHNAN S, ANSELL S, *et al.* Structure of liquid $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG). *Physical Review Letters*, 2000, **84(16)**: 3622–3625.
- [25] KINGERY W D. Surface tension of some liquid oxides and their temperature coefficients. *Journal of the American Ceramic Society*, 1959, **42(1)**: 6–10.
- [26] SAN MIGUEL M A, SANZ J F, ALVAREZ L J, *et al.* Molecular-dynamics simulations of liquid aluminum oxide. *Physical Review B*, 1998, **58(5)**: 2369–2371.