

半浮区小 Pr 数液桥热毛细对流的实验探讨

孙祉伟^① 韩金虎^② 戴乐蓉^③ 解京昌^② 胡文瑞^②

(^①中国科学院空间科学与应用总体部, 北京 100080; ^②中国科学院力学研究所, 北京 100080;

^③北京大学化学系, 北京 100871)

摘要 研究了半浮区汞液桥实验装置, 以探讨小 Prandtl 数流体的热毛细对流及其不稳定性. 发展了非接触光学监测汞桥的表面流动及形变的方法. 实验观察到热毛细对流及其受表面膜的影响, 证明表面膜的形成严重抑制了与热毛细对流有关的行为. 实验给出发生振荡的条件及其特征. 实验表明: 所观察到的临界 Marangoni 数远比数值模拟值为高. 讨论了表面膜的生成条件和过程, 以及所观察到的有表面膜情况下的表面振荡现象. 并给出了该振荡的特征和频率.

关键词 小 Pr 数流体 微重力 热毛细对流

热毛细对流由液体自由表面的温度(或浓度)梯度引起表面张力不均匀所驱动, 这种对流研究的一种典型情况是通过上加热的圆柱形液桥模型进行的, 其应用背景是浮区法的晶体生长过程. 材料熔融体的对流或振荡被认为是造成材料不均匀和缺陷的重要原因, 而在地面上浮力引起的对流是无法避免的. 空间的微重力环境可以极大地抑制浮力对流, 因而当今空间材料科学成为一个新兴的研究领域, 在微重力环境中热毛细对流作用变得重要. 在过去的近 20 年中, 关于表面张力梯度驱动对流的研究已有大量报道, 但绝大多数研究都是选用透明介质, 其 Prandtl 数 $Pr \geq 1$ ^[1-5]. 从应用观点考虑人们更为有兴趣的金属和半导体等材料均与小 Pr 数流体的行为相关, 小 Pr 数流体基本上是不透明的介质. 通常能用于观测透明介质的方法无法用于小 Pr 数流体, 更困难的是这类介质大多数为高熔点物质, 表面能高, 极易发生吸附作用, 因而小 Pr 数介质表面大都对杂质非常敏感. 因实验上特有的困难, 小 Pr 数流体热毛细对流和不稳定性的实验工作极少有报道^[6-13]. 半浮区小 Prandtl 数流体的液桥实验更是从未有过报道. 本研究试图在一定程度上填补这个空白, 实验得到了发生表面振荡的条件和特征, 及振荡频率.

1 实验装置

实验中选用了高纯汞作为介质, 其中不纯物铜含量小于 1×10^{-6} . 其热物理参数见表 1. 为尽量避免汞表面在空气中氧化形成氧化物表面膜或吸附其他气体而改变表面张力^[13,14]. 把汞桥套封在玻璃管中并充以高纯氮气, 其杂质含量小于 0.001%. 端体材料为铜, 经特殊处理后, 使其表面与汞浸润. 汞桥是靠这两个同轴心的铜柱之间汞的表面张力支撑的. 上端是

1996-02-14 收稿, 1996-07-18 收修改稿

可控温的纯铜柱(不纯物铁、铅、锌含量小于 $10^{-6}\%$)加热,冷端用冰水冷却. 用热电偶通过铜柱内部小孔测量上、下铜柱端面的加热和冷却温度,以避免干扰流体的行为.

表 1 汞的热物理参数(20℃)

物理量	数值
密度 $\rho/\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$	1.535×10^4
表面张力 $\sigma/\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$	0.4761
比热 $C_p/\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	138.94
热传导系数 $K/\text{J}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	8.32
热扩散系数 $\kappa/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	4.42×10^{-6}
动力粘性系数 $\nu/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	1.14×10^{-7}
Prandtl 数	0.025 8
热膨胀系数 β/K^{-1}	0.182×10^{-3}
表面张力温度系数 $\sigma'_T/\text{N}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	0.19×10^{-3}

动态 Bond 数 $B_d = \rho g \beta h^2 / \sigma'_T$ (σ 为流体介质密度, g 为重力加速度, h 为液柱高度, β 为热膨胀系数, σ'_T 为表面张力温度系数)表示重力效应对表面张力效应的相对重要性,为了减少重力的相对影响,我们把汞桥的尺度限制在 3 mm 之内,这时 $B_d < 1.14$.

由于无法用可见光显示技术观测不透明汞桥内部的流动,我们采用了 2 种办法检测其表面变形或振荡. (1)把激光束照射在汞桥的表面,由弯曲的汞表面所反射的光投射到一个观察屏上,所得到的放大的干涉图象由 CCD 监视并用录像机进行实时记录. 与表面变形相联系的干涉图样的变化会相应地显示出来. 这样即便很小的表面变形也可以观察出来. 在某一时刻这样得到的干涉条纹的典型图样示于图 1 中. (2)将一束激光从侧面射到汞桥上,在与其几近垂直的角度用显微放大镜观察其反射光,用 CCD 摄像记录并显示. 当汞表面有变形时,其相应的散射图样也变动. 特别当有表面膜存在时,散射图样变成类似于激光散斑图样(图 2). 为了得到汞表面的振荡频率,把 1 个光电探测器对准由汞表面所产生的干涉条纹. 当表面变形时,条纹就会移动,探测器的输出电压也随着变动. 从输出电压对时间的曲线(如图 3 所示),即可得到表面的振荡变化曲线及振荡频率.

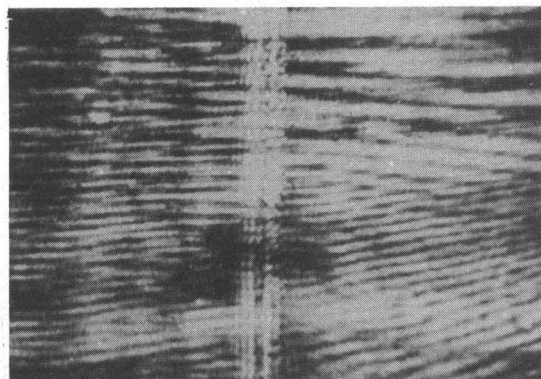


图 1 实验得到的干涉条纹典型图样

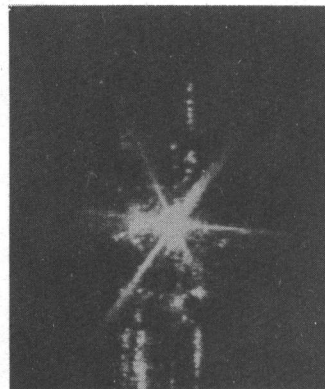


图 2 存在表面膜时的散射图样

当把激光斜射在汞表面上时,汞表面粘附的少量尘埃(也包括实验过程中所生成的膜)等起了示踪粒子的作用. 它们散射激光成为闪烁的光点,通过显微放大,这些光点随流体的移动可以清晰地显示出来. 表面流动的图样见图 4. 表面流动性能与表面膜是否存在有关,具有重要的意义. 当表面存在相当的温度梯度而无流动时,就意味着固态膜阻止了流动;汞桥表面由可流动变为不流动,标志着已有相当的固态膜覆盖在表面;据此可以判断膜会在什么时候,

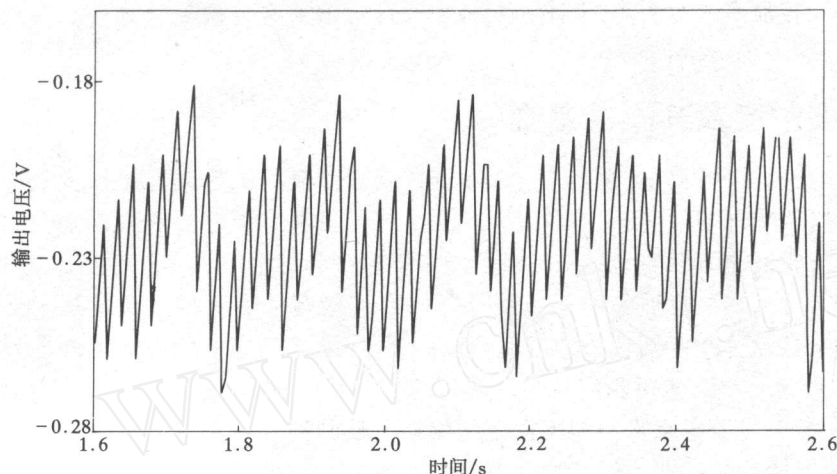


图3 时间-输出电压曲线

什么条件下生成.

2 汞液桥表面特性

浮区小 Pr 数介质的液桥普遍存在表面膜的问题,特别是在实验温度较高时,本文对此进行了定量分析. 当在汞桥的上下端施加温差时,表面清洁的汞只要有 $1\sim 2$ 度的温差即可激发表面流动. 当热端温度为 12°C 左右时,这种流动性可持续约 10 min ,然后逐渐消失. 当使用表面清洁的汞时,实验开始后随着所加温度的提高,表面流动加快,然后很快变慢并最终完全停止. 起初汞表面只浮游少量被照亮的尘埃亮点,随后出现斑点或斑块,显示膜片参与了流动,这些片状物逐渐增多,运动呈黏糊状并显著变慢直到完全停止. 升温越高,流动性能持续的时间越短,较高的温度加快了膜的形成. 膜的形成有两种因素:汞与氧,水蒸汽等直接相互作用,或吸附气体分子和尘埃;汞与铜端材料的互溶产物导致的结果. 为了进一步了解膜的起因,用铁作为冷、热端体材料(铁在汞中的溶解度为 $1.9 \times 10^{-19}\%$ 重量,铜则为 0.03%),将汞置于开舟之中,这时即便在较高的温度下汞表面仍具有很好的流动性. 据此,可以看出,铜端在汞中的溶解并在汞表面富集是铜端汞桥形成表面膜的首要原因. 铜在汞中的溶解度随温度增加而显著增加(在 100°C 时为 0.8% ,在 18°C 时 0.03%),实验开始时,汞表面只有较少杂质,沿表面的温度梯度加大时使 Marangoni 流动加快. 同时较高的温度在汞表面造成了更多的杂质因而使流动减慢最终流动被完全抑制. 发射光谱分析结果进一步证实了实验用过的汞桥中铜的含量比实验前增加了 50 倍,其他杂质检测不出. 重要的是若只从接近于表面层的汞中取样分析,其中铜的含量增加了上千倍,其他铜中杂质,如镁,铅等也急剧增加. 这种现象的

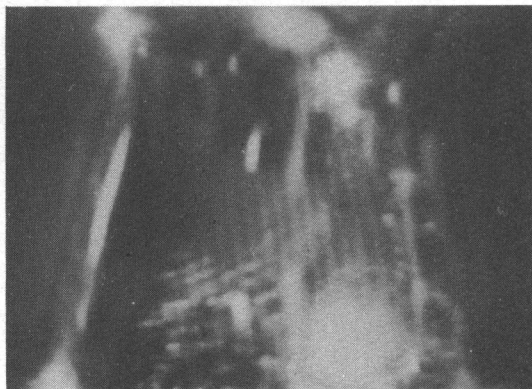


图4 表面的流动图样

什么条件下生成.

发生是由于汞有很高的表面能,上述元素与汞的合金绝大部分都被吸附在表面而形成了表面膜.

3 热毛细对流及其不稳定性

从上面的分析可以看出,在实验过程中维持汞表面良好的流动性是研究热毛细对流的关键问题.在这种情况下,我们需要尽量降低表面膜的影响.但是要完全避免与铜生成铜汞这是不可能的.我们能做到的是保持尽量低的实验温度和尽量短的实验时间.其表面流动性至少需要维持 5 min.在这种条件下还是可以得到一些有关热毛细对流及其不稳定性的信息的^[16].小 Pr 数流体半浮区液桥的数值模拟结果^[17]给出相应由稳态流动向非稳态过渡的临界 Reynolds 数为 6 250;使用我们的实验参数,这相当于约 3 ℃ 的临界温度,为了进一步降低实验温度,我们使用了干冰来冷却下铜柱而保持上柱的温度不超过 15℃.在 5 min 的实验过程中,汞表面保持着流动性.但是直到上下温差为 15℃ 时也没有观察到振荡.这一事实意味着临界温度不应低于 15℃,这要比数值模拟估计的结果高出好几倍.

一个有趣的现象是我们曾在提高的温差下(这时下铜柱是由冰水冷却,而不是干冰)观察到失去表面流动情况下的表面振荡.没有表面流动说明表面已被“脏膜”覆盖故此表面流动变为不可能.当温度升高时,从干涉影像和散斑图象中我们可以看到一系列不连续的表面变形,这可能是与膜的破裂有关的.Schorabe 等^[18]对于 Pr 数 $Pr \approx 1$ 的透明介质也观察到了“脏膜”抑制表面流动的类似现象.我们所观察到的这一振荡现象有如下一些特征:(1)振荡看起来发生在局部或至少是以表面的某个部位为中心,而不像硅油液桥那样整体振荡,振荡好像是发生在围绕着表皮破裂的部分.(2)振荡并非严格周期性的,这大概是由于表皮的影响.与大 Pr 数流体相比,振荡频率要高得多,约为 5 Hz.(3)由稳态向振荡过渡所需要加的温差比由振荡向稳态过渡的温差高.类似的现象对其他介质也有发生,但当有表面膜时更明显.这两个临界温度的差可达几度.图 3 给出了这一表面振荡的过程,它是由光电探测器对干涉条纹亮度的变化测量而得到的,给出的是输出电压对时间的曲线.应该说明的是在振荡曲线上叠加了一个 50 周的信号,它是由电视屏的 50 周场频引起的.实验参数是: $h = 1.8$ mm, $d = 3.0$ mm, $V/V_0 = 0.8$, $(\Delta T)_c = 18^\circ\text{C}$ (h 是液桥的高度, d 是铜柱直径, V_0 是长为 h , 截面直径为 d 的圆柱体积, V 是液桥的实际体积, $(\Delta T)_c$ 是由振荡转向稳定所对应的临界温差.为了计算 Marangoni 数,我们用公式 $Ma = |\sigma'_T| \Delta T h / \rho k \nu$, 临界 Marangoni 数 $(Ma)_c = 900$.有意思的是这个值与 Jurisch^[9,10]所得到的 $(M_d)_T = 1\ 200$ 接近.我们设想,在它们的全浮区液桥中大概也存在表面膜的影响.另一方面,由 Levenstan 等^[17]对半浮区小 Pr 流体液桥的数值模拟给出的临界 Reynolds 数 $(Re)_c$ 为 6 250 或 $(Ma)_c = 162$ ($Ma = Re \times Pr$) (Re 为 Reynolds 数, Pr 为 Prandtl 数).在 $h = 2$ mm 情况下,临界温差只有 $2.76 \approx 3^\circ\text{C}$.

4 讨论

Jurisch 等^[9,10]在动力真空环境中,用电子束从中部加热熔化钨和铌金属棒的办法,研究全浮区液桥的热毛细对流,由于不再需要通过使用不同材料(如我们实验中的铜柱)而施加温差,这就消除了不同材料相互作用生成表面膜的问题.动力真空又能在很大程度上消除介质与周围气体相互作用,他们得到的临界 Marangoni 数约为 1 200 而振荡频率为 1 Hz.最近,

Nakamura 等在其对硅介质的实验中得到 0.5 Hz 的振荡频率^[7], 但他们的实验既不能观察介质表面流动, 也不能研究外加温差变化的影响或确定临界 Marangoni 数 $(Ma)_c$. 在 Jurisch 的实验中, 尽管使用了同种材料, 材料中的杂质仍可能在高温下融化并在表面富集. 动力真空可能可以限制新膜的生成, 但材料的旧表皮仍可以浮在表面. 此外在高温下, 氧、氮、氢都可以与铈相互作用. 所有这些杂质都可以在高温下融化并对表面特性(如表面张力的温度系数)产生影响.

我们实验的主要目的在于探索小 Pr 数流体半浮区液桥热毛细对流的实验及其存在的难点, 虽然实验介质是汞, 但所观察到的许多实验现象却有普遍意义. 例如, 加热和冷却端若选用与流体介质不同的材料, 必然会遇到两种材料即不相溶又要浸润的困难, 而这又是形成膜的重要原因. Jurisch 等人采用电子束中间加热同种材料棒的办法试图回避这一困难, 但这种加热方式容易造成加热的不均匀, 而且由于是从中部加热, 他认为上半个桥浮力占主导, 下半个桥就是所关心的表面张力占主导的区域. 显然下半桥难免不受上部的影响, 再加上本来加热就不均匀. 这些因素都会导致结果的不可靠性. 我们认为在实验进行中实时监控流体表面的流动也是有意义的措施. 由于小 Prandtl 数流体一般表面能很高, 因污染等会改变其表面原有性质, 因此可能造成不好的实验重复性.

5 结论

本工作选用了常温下为液态且化学稳定性较好的汞, 并采用了简单可行的实验装置来探讨小 Pr 数流体热毛细对流的行为. 为了检测汞桥表面的微小变形, 发展了两种行之有效的诊断方法. 同时, 设计了监视汞表面流动性的方法, 这对于了解是否有表面膜形成十分重要. 与数值模拟所预言的临界温差小于 3℃ 相对照, 在我们的实验条件下(表面可能有“脏膜”或吸附气体的影响, 但至少具有流动性), 排除了这样低的临界温度的可能(应高于 15℃). 本文还介绍了所观察到的有膜表面振荡, 尽管我们还不能肯定这是不是起源于热毛细对流的因素.

参 考 文 献

- 1 Chang C E, Wilcox W R. Inhomogeneities due to thermocapillary flow in floating zone melting. *J Crystal Growth*, 1975, 28: 8~12
- 2 Chun C H, Wuest W. A microgravity simulation of the Marangoni convection. *Acta Astronautica*, 1978, 5:681~686
- 3 Velten R, Schwabe D, Scharmann A. Gravity-dependence of the instability of surface-tension-driven flow in floating zones. In: Kaldeich B H ed. *Proceedings 7th European Symposium on Materials and Fluid Science in Microgravity*. ESA SP-295, Oxford, UK, 1990. 271
- 4 Cao Z H, Xie J C, Tang Z M, et al. The influence of buoyancy on the onset of oscillatory convection in a floating zone. *Advance Space Research*, 1991, 11(7):163~166
- 5 Cao Z H, You H T, Tang Z M, et al. Experimental investigation of thermocapillary convection in a floating zone. *Advance Space Research*, 1991, 11(7):229~232
- 6 Hurler D T J, Jakeman E. Effects of fluctuations on the measurement of distribution coefficients by directional solidification. *J Crystal Growth*, 1969, 5:227~232
- 7 Chang Y K. The float-zone growth of Ti_3Au and Ti_3Pt . *J Crystal Growth*, 1983, 52:627~632
- 8 Cröll A, Müller-Sebert W, Nitsche R. Transition from steady to time-dependent Marangoni convection in partially coated sili-

- con melt zones. In: Kaldeich B H ed. Proceedings 7th European Symposium on Materials and Fluid Science in Microgravity, ESA SP-295, Oxford, UK, 1990. 263~269
- 9 Jurisch M, Loser W. Analysis of periodic non-rotational W striations in Mo single crystals due to nonsteady thermocapillary convection. *J Crystal Growth*, 1990, 102:214~222
 - 10 Jurisch M. Surface temperature oscillations of a floating zone resulting from oscillatory thermocapillary convection. *J Crystal Growth*, 1990, 102:223~232
 - 11 Rupp R, Auerochs S, Müller G, et al. Growth of GaAs single crystals by the floating zone technique under microgravity. *Adv Space Research*, 1991, 11(7):297~304
 - 12 Han J H, Sun Z W, Dai L R, et al. Experiment on thermocapillary convection of mercury liquid bridge in floating half zone. *J Crystal Growth*, 1996, 169:129~135
 - 13 Nakamura S, Kakimoto K, Hibiya T. Convection visualization and temperature fluctuation measurement in a molten silicon column. In: Ratke L, Walter H, Feuerbacher B eds. 9th European Symposium on Gravity Dependent Phenomena in Physical Sciences, Berlin, Germany, May 2~5, 1995
 - 14 Nicholas M E, Joyner P A, Tessem M, et al. Effect of various gases and vapours on the surface tension of mercury. *J Phys Chem*, 1961, 65:1373~1375
 - 15 Olsen D A, Johnson D C. The surface tension of Mercury-Thallium and Mercury-Indium amalgams. *J Phys Chem*, 1963, 67:2529~2531
 - 16 Xie J C, Hu W R. Influence of heating rate on the onset of oscillation in liquid bridge of half floating zone. *J Thermal Science*, 1994, 3(2):122~125
 - 17 Levenstam M, Amberg G. Hydrodynamical instabilities of thermocapillary flow in a half floating zone. *J Fluid Mechanics*, 1995, 297:357~372
 - 18 Schwabe D, Scharmann A. Marangoni and buoyant convection in an open cavity under reduced and under normal gravity. *Adv Space Research*, 1988, 8(12):175~185
 - 19 Schwabe D, Scharmann A. Microgravity experiments on the transition from laminar to oscillatory thermocapillary convection in floating zones. XXV COSPAR Topical Meeting G 1, Paper G 1.2.4. Recent Scientific Results and Developments of Materials Sciences in Space, July 1984, Graz, Austria; And also *Z Flugwiss, Weltraumforsch*, 1985, 9:21