

文章编号: 1000-324X(2007)05-1015-04

对流作用下胞晶侧向生长实时观察

靳全伟, 陈长乐, 段萌萌, 李展耀

(西北工业大学 陕西省凝聚态结构与性质重点实验室, 西安 710072)

摘要: 对透明模型合金的晶体生长过程进行实时观测, 是研究晶体凝固过程的有效手段, 对认识晶体组成结构形成机理及控制金属组织结构具有重要的意义. 采用自行设计的定向晶体生长室和观察测量装置, 在不同的晶体生长速度下, 对丁二腈-5wt% 乙醇透明模型合金定向凝固的界面生长形态进行了实时观测研究. 实验发现, 由于重力对流和微对流机制对晶体生长过程的影响, 使得胞晶在生长过程中有明显顺流偏转现象.

关键词: 定向生长; 实时观察; 微对流; 顺流偏转

中图分类号: O782 **文献标识码:** A

Observation *In-situ* for Side-growth of the Cell Growth by Convection

JIN Quan-Wei, CHEN Chang-Le, DUAN Meng-Meng, LI Zhan-Yao

(Shaanxi Key Laboratory of Condensed Matter Structures and Properties, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

Abstract: Observation *in-situ* of crystal growth of the transparent model alloy is an effective method to study solidification of crystal. An apparatus system to study the process of crystal growth was designed, which includes the room of crystal growth in unidirectional solidification and the observation and measurement apparatus. With this experiment system, the morphology of growing interface of Succinonitrile-5wt% ethanol as a transparent model alloy were experimentally studied at different growth condition parameters. It is found that the effect of the buoyancy-driven flow and the microconvection in the crystal growth process can cause downstream alternation of the cell growth direction.

Key words: unidirectional growth; real-time observation; microconvection; downstream alternation

1 引言

熔体凝固过程中由于重力^[1,2]和表面张力^[3,4]以及温度梯度的存在, 引起熔体的微观对流, 这种对流会影响凝固过程的传质和传热, 进而影响着凝固体系的晶体生长组织结构的形成.

晶体生长过程中产生的各种组织结构, 一般直接与凝固界面的形态密切相关^[5], 因此界面形态研究是晶体生长非常活跃的研究领域. 通常晶体生长界面形态是其前端温度场、浓度场和流场的共同作用, 而实时原位观测是认识凝固过程界面形貌形成规律最直接的研究方法, 但界面形貌与熔体流动之

间关系的实时观测研究目前还少有报道.

为了更准确地研究凝固过程界面形态与熔体对流之间的规律, 本工作提出了凝固过程固液界面相实时观察的研究方法. 基本思路是选用一种模拟金属材料 SCN 晶体, 在“三明治”型透明晶体生长室内进行熔体晶体生长, 通过光学系统实时观察记录晶体材料在固液界面上的凝固过程, 实现了动态过程的实时观测和测量, 从中获得了相关的信息, 为研究流动过程提供了一种研究技术, 并得到一些有用的结果.

2 实验装置

收稿日期: 2006-09-15, 收到修改稿日期: 2006-11-13

基金项目: 国家自然科学基金重点 (50331040; 60171034)

作者简介: 靳全伟 (1981-), 男, 硕士研究生. E-mail: chencl@nwpu.edu.cn

我们设计并制作了一套晶体生长的实时观察实验装置, 主要包括四部分: 光学观察部分, 晶体生长部分, 温度控制及测量部分, 实时记录部分.

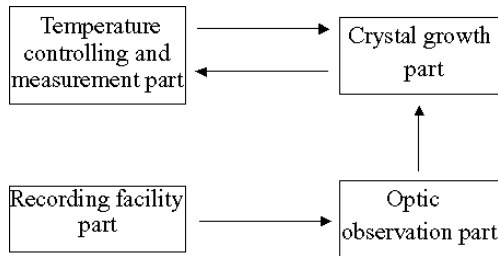


图 1 晶体生长实时观察实验示意图

Fig. 1 Scheme of real-time observation system of crystal growth

2.1 光学观察部分

利用灵敏度比较大的相差显微镜或微分干涉显微镜, 即使晶体的固相和液相的折射率差不是很大, 晶体生长时的表面形貌一般还是能很明显的观察到的. 对于反射显微镜, 晶体表面反射光强度较弱, 进行晶体生长的实时观察难度较大. 实验中选用的 SCN 晶体为无色透明, 该晶体的物理性质及凝固特性^[6] 适合于透射型浮雕相衬显微镜的观察. 由于微观流动在微米量级上, 所以选用 Olympus 公司生产的分辨率较高的 CKX-41 倒置型显微镜与 1/2 英寸的 CCD 配合使用, 最大放大倍数为 1360 倍, 最小分辨尺寸为 $0.5\mu\text{m}$.

2.2 晶体生长部分

晶体生长室是实验的关键装置, 它处于控温室内, 通过温度调节器来控制晶体生长速度.

晶体生长室用光学玻璃和金属铜片组成, 整体形状呈“三明治”型, 如图 2 所示.

晶体生长室内部取 $35\text{mm}\times 15\text{mm}\times 0.5\text{mm}$ 的矩形体, 这是为了使晶体生长室在定向凝固时有比较均匀的温度传递, 成为径向对称的矩形扩散场, 晶体生长室的厚度比较薄, 这样有利于温度控制和定

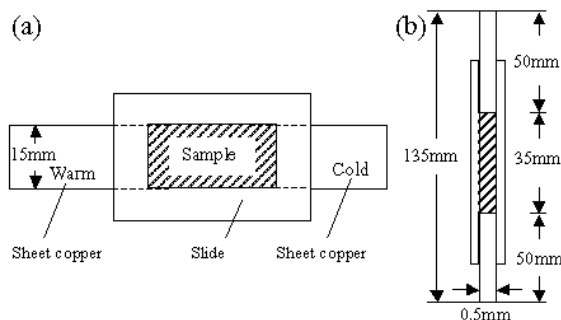


图 2 晶体生长室示意图

Fig. 2 Scheme of crystal growth room

(a) Planform; (b) Side view

向生长, 加热和冷却装置分别置于两边的铜片上.

2.3 温度控制及测量部分

温度控制系统采用 SWP-T803 数字控温仪控温, 控温精度 0.1°C , 可在 $0\sim 200^\circ\text{C}$ 范围内任意调节. 在晶体生长室内部沿径向每隔 $500\mu\text{m}$ 放置一个热电偶, 所测温度通过 SWP-MD80 数字测温仪连接到计算机上, 测温精度 0.1°C .

2.4 实时记录部分

采用像素为 1024×776 的 CCD(Uniq) 摄像头同步跟踪拍摄, 抓拍速度可达 45fps, CCD 采集到的信号通过 12 位的数字卡处理就可将实验图样实时记录在计算机上.

3 实验结果及分析

采用上述观察装置进行凝固过程实时观察实验, 可以观察到在不同温度梯度下 SCN 合金晶体生长过程的形貌图样. 在实验中将显微镜水平放置, 晶体生长室的俯视面 (图 2(a) 所示) 与水平方向成 90° . 观察发现, 在重力和温度梯度引起的与晶体生长方向垂直的液相流动的作用下, 胞晶向顺流方向偏转生长, 图 3、4、5 为不同生长速度下胞晶形态图样 (图中液相流动的方向是从左到右). 实验测得的液相流动速度为 $V_0 = 10.8\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 温度梯度 $G = 3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, t 为记录时间.

从图 3 中可以看到胞晶前端左侧迎流方向上生长受到了抑制, 而前端右侧顺流方向上得到了充分生长. 这是由于液相流动从左到右不断冲刷胞晶前端, 液相中本身所包含的热量和溶质使得胞晶前端的温度场和浓度场发生了改变, 胞晶前端浓度场较高, 由于流动的方向是从左到右的, 热量首先在胞晶的左侧释放, 使得左侧的温度场高于右侧, 这一侧晶体生长释放的溶质不能及时的被带走, 就抑制了左侧迎流方向胞晶的生长; 而右侧溶质温度场低于左侧, 晶体生长过程中释放出的溶质能很快地被带走, 这样就促进了右侧顺流方向胞晶的生长.

导致胞晶顺流偏转生长的原因有两个: (1) 重力对流^[7] 的影响, 液相中带有大量的热量和溶质, 热量使得胞晶迎流方向的生长受到了抑制, 而溶质的富集既抑制了迎流侧的生长又促进了顺流方向的生长; (2) 胞晶间的相互作用很强, 主要是微对流和扩散效应, 胞晶列中的某一个胞晶的上流胞晶释放的结晶潜热和溶质传到该胞晶的迎流侧, 限制了其迎流侧的生长, 从而产生胞晶的顺流偏转. 在胞晶生长时其前端温度场和浓度场的变化决定了

胞晶的生长形态, 而重力对流和微对流^[8] 则共同影响了温度场和浓度场的变化.

定向凝固中胞晶的生长通常是以胞晶列的形式生长, 考察流场对胞晶的影响不能孤立的研究单个胞晶的行为, 而应该研究单个胞晶与周围胞晶列在时间和空间条件上产生的相互约束作用^[9]. 只有在研究胞晶阵列整体行为的基础上, 具体分析单个胞晶生长端前沿浓度场在流场作用下的变化情况, 才能找出胞晶生长顺流偏转的机理.

胞晶列之间的影响使得某一胞晶前端熔体的流动形式有所改变, 不同于孤立单个胞晶在流场中其表面附近的流动. 熔体在流过胞晶 A 的顶点后, 沿胞晶 A 背流侧的边界层而下, 到达胞晶 B 的迎流侧的边界层后, 改变方向沿胞晶 B 迎流侧而上, 由于熔体粘性和胞晶表面张力的作用, 在胞晶 B 的迎流侧和胞晶 A 背流侧之间形成流动死区, 见图 3(b). 生长过程中部分溶质被释放到流动死区内,

溶质不能被很快扩散, 高浓度场也使得胞晶迎流侧的生长被抑制.

从图 4 中可以看到, 随着胞晶生长速率的增大, 胞晶前端的扰动加强, 使得胞晶前端分叉, 而且左侧迎流方向的二次胞晶生长明显落后于右侧顺流方向的二次胞晶的生长, 在这里微对流和扩散效应起了很大的作用. 熔体凝固时要向液相中释放溶质, 并向液相中释放结晶热, 而右侧顺流方向上二次胞晶的充分生长, 使得该侧和其下流相邻胞晶之间区域的液相温度及溶质浓度较高, 这样就抑制了其下流左侧迎流方向上二次胞晶的生长.

图 5 中显示了在生长速率继续增大时, 胞晶开叉也越来越明显, 但毫无例外其左侧迎流方向上二次胞晶的生长都受到了抑制, 而右侧顺流方向上的二次胞晶得到了充分生长, 相邻的二次胞晶之间相互竞争, 生长的不对称性使左侧迎流方向上的二次胞晶被淘汰.

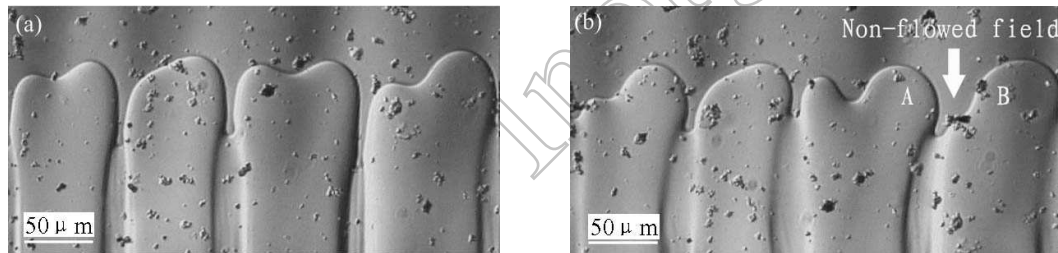


图 3 生长速度 $V=1.06\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时丁二腈 -5wt% 乙醇合金模型的胞晶偏转生长

Fig. 3 Downstream alternation of SCN-5wt% ethanol crystal alloy at cell growth $V=1.06\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$

(a) $G=3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, $V=1.06\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $t=28.9\text{s}$; (b) $G=3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, $V=1.06\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $t=52.7\text{s}$

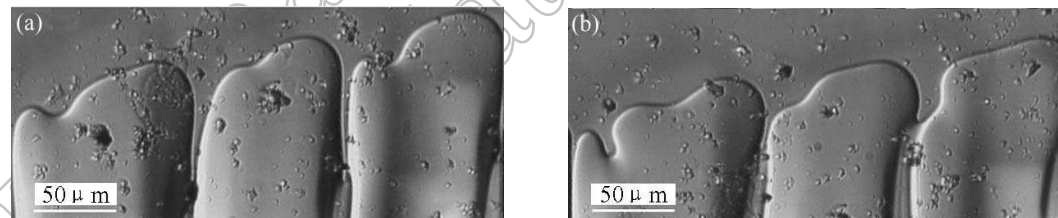


图 4 生长速度 $V=1.53\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时丁二腈 -5wt% 乙醇合金模型的胞晶偏转生长

Fig. 4 Downstream alternation of SCN-5wt% ethanol crystal alloy at cell growth $V=1.53\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$

(a) $G=3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, $V=1.53\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $t=34.1\text{s}$; (b) $G=3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, $V=1.53\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $t=62.8\text{s}$

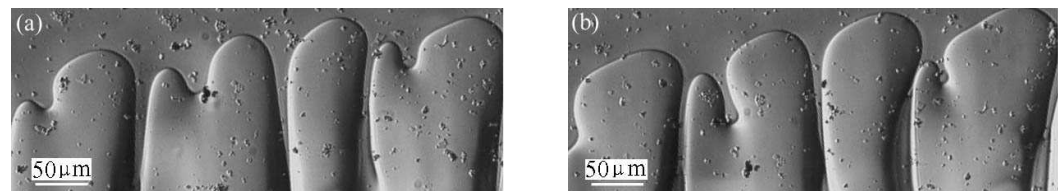


图 5 生长速度 $V=1.79\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时丁二腈 -5wt% 乙醇合金模型的胞晶偏转生长

Fig. 5 Downstream alternation of SCN-5wt% ethanol crystal alloy at cell growth $V=1.79\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$

(a) $G=3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, $V=1.79\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $t=40.3\text{s}$; (b) $G=3.72\text{k}\cdot\text{mm}^{-1}$, $V=1.79\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $t=85.6\text{s}$

4 结论

从实验结果看出, 实验装置的设计能清晰地显示晶体生长过程和某个瞬间生长形貌, 是适合于凝固过程的实时观察. 丁二腈 -5wt% 乙醇合金模型的定向凝固观察表明, 在重力对流和微对流的共同作用下, 胞晶前端温度场和浓度场的变化, 使得胞晶的生长形态发生了顺流偏转; 随着生长速度的增大, 迎流侧二次胞晶的生长受到了明显抑制.

参考文献

- [1] Onuma K, Tsukamoto K, Sunagawa I. *J. Crystal Growth*, 1988, **89**: 177-188.
- [2] Onuma K, Tsukamoto K, Sunagawa I. *J. Crystal Growth*, 1989, **98**: 384-390.
- [3] Jin W Q, Pan Z L, Cai L X, *et al.* *J. Crystal Growth*, 1999, **206**: 81-87.
- [4] 金蔚青, 潘志雷, 蔡丽霞, 等 (JIN Wei-Qing, *et al.*). 无机材料学报 (*Journal of Inorganic Materials*), 2000, **15** (3): 385-391.
- [5] 蔡丽霞, 金蔚青, 潘志雷, 等 (CAI Li-Xia, *et al.*). 无机材料学报 (*Journal of Inorganic Materials*), 2001, **16** (4): 609-614.
- [6] Boettinger W J, Shechtman D, Schaefer R J, *et al.* *Metall. Trans.*, 1984, **15A**: 55-66.
- [7] 梁歆桢, 金蔚青, 简来成, 等. 材料研究学报, 2002, **16** (1): 55-58.
- [8] 金蔚青 (JIN Wei-Qing). 无机材料学报 (*Journal of Inorganic Materials*), 2005, **20** (1): 42-46.
- [9] 毛应俊, 刘建, 周尧和. 人工晶体学报, 1997, **26** (1): 47-51.

Journal of Inorganic Materials