

УДК 539.2

Двухфазная зона при плавлении Al_2O_3 лазерным излучением и при затвердевании расплава в условиях свободного охлаждения

В.К. Битюков, В.А. Петров, И.В. Смирнов

*Московский государственный институт радиотехники, электроники
и автоматики (технический университет)*

E-mail: bitukov@mirea.ru

Экспериментально и на основании расчетно-теоретических исследований показано, что двухфазная зона с переменной по координате концентрацией жидкой и твердой фаз образуется как при нагреве оксида алюминия концентрированным лазерным излучением, так и при свободном охлаждении расплава.

В процессе нагрева эта зона образуется только на начальной стадии плавления. Ее ширина невелика и меньше глубины проникновения греющего лазерного излучения из-за влияния интенсивного отвода тепла излучением и теплопроводностью через кристалл.

Протяженность двухфазной зоны, образующейся при кристаллизации в условиях свободного охлаждения, много больше, чем при плавлении, и она может занимать почти всю толщину расплава.

Температурное плато яркостной (эффективной) температуры, регистрируемое при затвердевании пирометром с длиной волны 0,65 мкм, объясняется образованием протяженной двухфазной зоны. Однако это плато реализуется не для всех длин волн. Показана важность влияния величины коэффициента поглощения расплава на возможность появления температурного плато.

В результате кристаллизации с формированием двухфазной зоны может образовываться пористая структура, состоящая из кристаллов малых размеров, приводящая к существенной диффузности отражения поверхности.

Ключевые слова: оксид алюминия, двухфазная зона, лазерный нагрев, свободное охлаждение, яркостная температура, плато, кристаллизация, структура.

ВВЕДЕНИЕ

Плавление и затвердевание полупрозрачных тугоплавких оксидов алюминия, циркония, магния, иттрия и некоторых других элементов проходят в условиях, при которых вклад внутреннего переноса энергии излучением является существенным, а иногда и определяющим. Поскольку в этом случае есть объемные источники и стоки тепла, то при фазовых переходах возможно образование двухфазной зоны, если в объеме смогут появиться зародыши новой фазы. В работе [1] впервые была предложена модель плавления и затвердевания в условиях радиационно-кондуктивного переноса энергии (РКПЭ), учитывающая возможность образования протяженной двухфазной зоны за счет радиационного теплопереноса. При этом конкретно были рассмотрены лишь три упрощенные задачи для модельных веществ. В частности, считалось, что коэффициент поглощения в твердой и жидкой фазах не зависит ни от длины волны, ни от температуры, а теплофизические свойства

также принимались постоянными и одинаковыми для обеих фаз, неравновесные эффекты, такие как переохлаждение, не принимались во внимание, природа образования центров кристаллизации не рассматривалась вообще. Хотя ясно, что образование двухфазной зоны возможно везде, где есть объемные источники или стоки тепла и в объеме могут появиться зародыши новой фазы, однако вопрос об экспериментальном или расчетно-теоретическом изучении возможности образования двухфазной зоны при плавлении и затвердевании тугоплавких оксидов до недавнего времени не изучался.

В работе [2] представлен подробный анализ полученных авторами монографии результатов расчетов РКПЭ в условиях образования двухфазной зоны. Рассмотрен как процесс плавления, так и процесс затвердевания плоского слоя. Убедительно показана необходимость учета образования двухфазной зоны. Но так же, как и в [1], в работе [2] анализировались РКПЭ лишь в модельных серых средах, что существенно упрощало математическую формулировку проблемы и облегчало проведение расчетов, однако не позволяло получать результаты для каких-либо конкретных веществ.

Более реальная математическая формулировка проблемы Стефана применительно к полупрозрачным тугоплавким оксидам была предложена в работе [3]. Помимо одномерной нестационарной задачи совместного радиационно-кондуктивного теплопереноса с учетом возможности образования двухфазной зоны, в модели принимались во внимание: возможные перегрев и переохлаждение, произвольные нелинейные граничные условия на передней и задней поверхностях образца, зависимость теплофизических свойств обеих фаз от температуры, а терморadiационных свойств — от температуры и длины волны. Эта модель использована в настоящей работе для численного расчета температурных распределений в плоском образце оксида алюминия в процессе его нагрева концентрированным лазерным излучением и последующего охлаждения после его отключения, поскольку оксид алюминия является единственным из тугоплавких оксидов, для расплава которого есть данные по оптическим и теплофизическим свойствам, хотя расхождения результатов, полученных различными авторами, весьма большие.

МЕТОДИКА РАСЧЕТА И ИСХОДНЫЕ ДАННЫЕ

В соответствии с разработанной математической моделью рассматривается плоский слой нерассеивающего тугоплавкого оксида толщиной L , который нагревается с передней поверхности ($x = 0$) лазерным излучением. Уравнение сохранения энергии для однофазного состояния (твердое или жидкое) в одномерном случае записывается в виде

$$\rho(T)C_p(T)\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(\Lambda(T)\frac{\partial T}{\partial x}\right) + Q_l(x) + Q_{rad}(x). \quad (1)$$

Здесь: t — время, T — температура, x — текущая координата слоя, $\rho(T)$ — плотность, $C_p(T)$ — теплоемкость, $\Lambda(T)$ — коэффициент теплопроводности, $Q_l(x)$ — функция внутренних источников тепла при нагреве лазерным излучением

$$Q_l(x) = q_0(t)(1 - R_l)k_l \exp(-k_l x), \quad (2)$$

в которой $q_0(t)$ — плотность потока лазерного излучения, падающего на поверхность $x = 0$, R_l — отражательная способность передней поверхности слоя для длины волны лазерного излучения, k_l — коэффициент поглощения для лазерного

излучения, Q_{rad} — внутренние источники тепла из-за радиационного переноса энергии

$$Q_{\text{rad}}(x) = 2\pi \int_{-1}^1 d\mu \int_0^{+\infty} k(\nu, T) \left(I(\nu, x, \mu) - n^2(\nu, T) I_p(\nu, T(x)) \right) d\nu, \quad (3)$$

где μ — косинус угла между направлением распространения излучения и нормалью к поверхности, ν — частота излучения, $I(\nu, x, \mu)$ — интенсивность излучения, $I_p(\nu, x, \mu)$ — равновесная (планковская) интенсивность излучения, $n(\nu, T)$ — показатель преломления. Функция $I_\nu(x, \mu)$ рассчитывается из уравнения переноса излучения

$$\mu(x) \frac{\partial I_\nu(x, \mu)}{\partial x} = k(\nu, T) \left[n^2(\nu, T) I_p(\nu, T(x)) - I_\nu(x, \mu) \right], \quad (4)$$

а $\mu(x)$ изменяется в соответствии с законом Снелла: $n(\nu, T) \sqrt{1 + \mu^2(x)} = \text{const}$.

Математическая модель включает возможное наличие протяженной двухфазной зоны, в которой фазовый переход осуществлялся лишь частично. Предполагается, что в этой области маленькие частицы твердой и жидкой фаз перемешаны, их температура равна температуре плавления (затвердевания), а время релаксации двухфазной зоны к тепловому равновесию между твердой и жидкой фракциями является очень коротким. Двухфазная зона может быть охарактеризована средним эффективным размером твердых и жидких частиц r , а также объемной частью жидкой фазы ξ . Предполагалось также, что в случае тугоплавких оксидов размеры частиц меньше нескольких микрометров и, соответственно, много меньше размеров двухфазной зоны.

В этом случае уравнение сохранения энергии для двухфазной зоны имеет вид

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} = \frac{Q_f + Q_{\text{rad}}}{Q_f \rho}. \quad (5)$$

Здесь ξ — объемная часть жидкой фазы в двухфазной зоне, ρ — плотность двухфазной области, которая рассчитывается как $\rho = \rho_{\text{sol}}(1 - \xi) + \rho_{\text{liq}}\xi$, где ρ_{sol} и ρ_{liq} — плотности твердой и жидкой фаз при температуре плавления соответственно, а Q_f — скрытая теплота плавления.

Граничные условия на свободных поверхностях задаются следующим образом:

$$\Lambda(\partial T / \partial x) = \alpha(T - T_0) + \varepsilon^\otimes \sigma \phi(T)(T^4 - T_0^4) \quad \text{при } x = 0, \quad (6)$$

$$\Lambda(\partial T / \partial x) = -\alpha(T - T_0) - \varepsilon^\otimes \sigma \phi(T)(T^4 - T_0^4) \quad \text{при } x = L, \quad (7)$$

$$\left. \begin{aligned} I_\nu^+(\mu) \Big|_{x=0} &= R_\nu(\mu) I_\nu^-(\mu) \Big|_{x=0} & \mu > 0, \\ I_\nu^-(\mu) \Big|_{x=L} &= R_\nu(\mu) I_\nu^+(\mu) \Big|_{x=L} & \mu > 0, \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

В уравнениях (6)–(8): α — коэффициент теплоотдачи с поверхности для конвективного теплообмена, ε^\otimes — эффективная излучательная способность материала

в спектральной области его непрозрачности, $\varphi(T)$ и $\phi(T)$ — относительные части потока равновесного теплового излучения в области непрозрачности, $I_v^+(\mu)$ и $I_v^-(\mu)$ — интенсивности излучения, распространяющегося в направлении положительной и отрицательной осей x соответственно, $R_v(\mu)$ — отражательная способность поверхности, рассчитываемая по формулам Френеля, σ — постоянная Стефана–Больцмана, T_0 — температура окружающей среды.

Кроме граничных условий (8), в модели сформулированы граничные условия для уравнений сохранения энергии и переноса излучения на внутренних границах фаз: твердая — жидкая, твердая — двухфазная зона, жидкая — двухфазная зона [3].

Размеры частиц и объемное содержание жидкости в двухфазной зоне при плавлении определяют оптические свойства двухфазной зоны — коэффициент поглощения k и коэффициент рассеяния β . Рассеяние должно иметь место из-за различий показателя преломления твердой и жидкой фаз. Однако в разработанной модели пришлось отказаться от учета рассеяния, т. к. это значительно усложнило бы математическую формулировку задачи и алгоритм ее решения. Кроме того, размер частиц в двухфазной зоне очень трудно определить.

Оптические свойства для двухфазной зоны рассчитывались по соотношениям:

$$n = n_{\text{sol}}(1 - \xi) + n_{\text{liq}}\xi, \quad (9)$$

$$1/k = (1/k_{\text{sol}})(1 - \xi) + (1/k_{\text{liq}})\xi,$$

где n_{sol} и n_{liq} — показатели преломления твердой и жидкой фаз при температуре плавления, k_{sol} и k_{liq} — коэффициенты поглощения твердой и жидкой фаз соответственно.

Данные по температурным зависимостям теплоемкости, кондуктивного (не отягощенного влиянием излучения) коэффициента теплопроводности и плотности твердой фазы, а также по теплоте плавления были взяты из известных справочников по теплофизическим и термодинамическим свойствам и там, где это было необходимо, были аппроксимированы соответствующими уравнениями. Данные по температурной и частотной зависимостям коэффициента поглощения и показателя преломления твердой фазы взяты из рекомендаций, представленных в работах [4, 5], и использовались в виде таблиц в интервале от 0,5 до 7 мкм с шагом 0,1 мкм по длине волны и с шагом 200 К по температуре. Температура плавления принималась равной 2327 К. Сложнее было выбрать данные по теплофизическим и оптическим свойствам расплава оксида алюминия, поскольку таких данных мало, расхождения значительны, а обобщений и рекомендаций нет. На основе ограниченных экспериментальных данных коэффициент теплопроводности оксида алюминия в жидкой фазе был принят равным 2,05 Вт/м·К, плотность в жидкой фазе $\rho = 5543 - 1,08 \cdot T \cdot \text{кг/м}^3$, температура T — в Кельвинах, а теплоемкость $c_p = 1957$ Дж/кг·К. Показатель преломления расплава как функция длины волны рассчитывался по формуле Лоренц–Лорентца с учетом показателя преломления кристалла вблизи температуры плавления и с использованием соответствующих значений плотностей твердой и жидкой фаз. Полученное значение для длины волны 0,63 мкм неплохо согласовывалось с единственным имеющимся в литературе экспериментальным значением из работы [6], равным 1,744. Наиболее сложным являлся выбор данных по спектральной и температурной зависимости коэффициента поглощения k расплава. Расхождения результатов различных авторов по k оказались очень велики [7]. Была предпринята попытка подобрать обобщающие

уравнения, аппроксимирующие частотную и температурную зависимости k расплава, однако отклонения экспериментальных точек различных авторов оказались очень большими, и пришлось от этого отказаться. Для проведения расчетов в качестве данных по коэффициенту поглощения расплава были использованы результаты работы [8] с экстраполяцией в коротковолновую область на основе результатов других измерений, приведенных в [7]. При этом предполагалось, что при переходе из твердой фазы в расплав коэффициент поглощения увеличивается скачкообразно в момент перехода при температуре плавления.

В граничные условия на свободных поверхностях входил коэффициент теплоотдачи при свободной конвекции в воздухе, который был принят равным $6 \text{ Вт/м}^2\cdot\text{К}$. Эта составляющая теплоотдачи играла очень маленькую роль. Учитывался также отвод тепла за счет испарения от нагреваемой поверхности и принималось во внимание возможное перемещение этой свободной границы. Для некоторых используемых значений плотностей потока греющего излучения величина этих эффектов была несущественной. Из-за отсутствия экспериментальных данных по k расплаву на длине волны греющего излучения, равной $10,6 \text{ мкм}$, его величина принималась постоянной и равной 1000 см^{-1} , что соответствовало имеющимся экспериментальным данным, полученным при комнатной температуре. Коэффициент отражения поверхности для греющего излучения принимался равным $0,03$. Количество узлов по координате составляло 200 , сетка была неравномерной с более мелким шагом вблизи нагреваемой поверхности. Эта сетка все время отслеживала положение свободных границ и границ двухфазной зоны, то есть узлы, определяющие положение границ, перемещались с каждым шагом по времени. Численный алгоритм решения подробно описан в работе [3]. Базовое значение шага интегрирования по времени составляло 10 мс , в некоторых расчетах этот шаг равнялся 1 мс .

Модель фазовых превращений включала алгоритмы появления новой и исчезновения старой фазы. Это использовалось при анализе возможного переохлаждения и перегрева. Описание алгоритмов также дано в [3].

Теплопроводность и теплоемкость в двухфазной зоне знать не нужно, поскольку температура этой зоны постоянна и равна температуре фазового перехода. Рассеяние в двухфазной зоне не учитывалось, поскольку, во-первых, различие показателей преломления твердой и жидкой фаз мало, а во-вторых, очень трудно оценивать размеры частиц образующейся новой фазы.

Во всех расчетах принималось, что в момент включения нагрева ($t = 0$) температура плоского слоя была постоянной и равной 300 К , а геометрическая толщина слоя варьировалась в диапазоне от 5 до 10 мм .

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ИХ СОПОСТАВЛЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ

На рис. 1 в качестве примера представлены результаты расчета полей температур в плоском слое монокристаллического оксида алюминия толщиной 5 мм в течение первых пяти секунд нагрева при плотности потока 600 Вт/см^2 . На поверхности слоя температура плавления 2327 К достигается в момент $t = 0,94 \text{ с}$ от начала нагрева, и в процессе дальнейшего нагрева температура поверхности не изменяется в течение $0,44 \text{ с}$, а двухфазная зона плавления за этот промежуток времени несколько расширяется. Начиная с момента $1,38 \text{ с}$ появляется слой однофазного расплава, и в процессе дальнейшего нагрева толщина расплава и температура его поверхности увеличиваются. К моменту, соответствующему 5 с от начала нагрева, толщина расплава достигает $0,36 \text{ мм}$, а температура его поверхности — 2775 К . При этом температура задней поверхности образца составляет 1336 К .

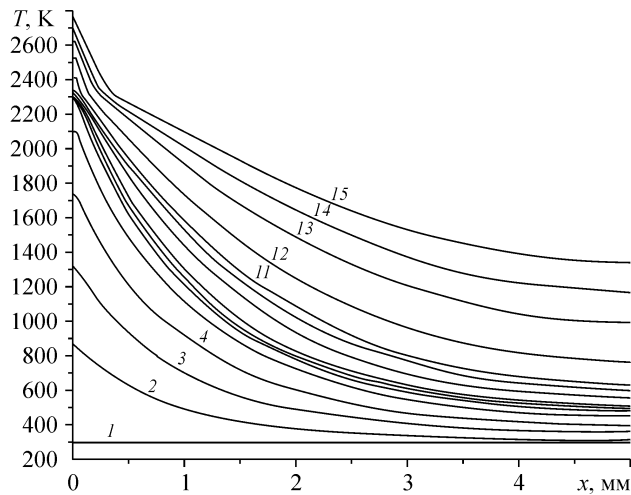


Рис. 1. Распределение температуры в плоском слое Al_2O_3 при нагреве плотностью потока 600 Вт/см^2 в различные моменты времени.

$t = 0$ (1), 0,2 (2), 0,4 (3), 0,6 (4), 0,8 (5), 0,9 (6), 0,94 (7), 1 (8), 1,2 (9), 1,38 (10), 1,5 (11), 2 (12), 3 (13), 4 (14), 5 (15) с.

На рис. 2 показаны результаты расчета зависимостей от времени нагрева при плотности потока 600 Вт/см^2 , температуры поверхности $T_{\text{пов}}$, толщины расплава δ и эффективных (яркостных) температур $T_{\text{эф1}}$ и $T_{\text{эф2}}$, определенных на основании расчета интенсивности выходящего излучения для длин волн 0,55 и 0,72 мкм. Значения этих длин волн соответствуют длинам волн пирометра, который использовался нами в экспериментальных исследованиях. Видно, что на начальной стадии плавления, когда имеется изотермическая двухфазная зона, эффективные температуры много ниже температуры плавления.

Результаты численного моделирования процесса нагрева показали, что при начале плавления замедляется темп прогрева твердой фазы, а образованный очень тонкий слой расплава в видимой и начале ИК-области спектра является оптически прозрачным. Характер изменения эффективных температур на участке плавления, как и сам процесс плавления, существенно зависит от величины плотности потока. Нарастание толщины расплава происходит очень неравномерно. Первая стадия плавления связана с глубиной проникновения греющего излучения CO_2 лазера. Эта глубина примерно равна 10 мкм. Именно на этой глубине имеет место изотермическая двухфазная зона при начале плавления, причем толщина этой двухфазной зоны не зависит от плотности потока, но для ее полного расплавления при разных плотностях потока требуется разное время. Поскольку эта зона

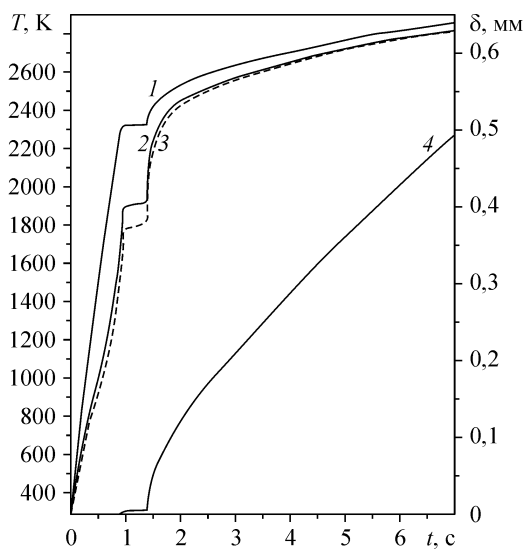


Рис. 2. Изменение температуры поверхности $T_{\text{пов}}$ (1), эффективных температур $T_{\text{эф1}}$ (2), $T_{\text{эф2}}$ (3) и толщины слоя расплава δ (4) при нагреве плотностью потока 600 Вт/см^2 .

очень тонкая, то выходящее из слоя излучение в области полупрозрачности определяется не только этой изотермической двухфазной зоной, но и в значительной степени лежащими глубже более холодными слоями кристалла. Поэтому эффективные (яркостные) температуры в интервале времени, когда идет процесс плавления в этой зоне, много ниже температуры плавления. На этой стадии подводимая энергия в значительной мере расходуется на нагрев твердой фазы, находящейся под тончайшим слоем расплава. Но с некоторого момента после полного расплавления двухфазной зоны энергия начинает в основном вкладываться в плавление, и толщина расплава очень быстро увеличивается. Если двухфазная зона толщиной менее 10 мкм плавилась 0,4 с, то во второй стадии всего за 0,2 с толщина увеличилась на 60 мкм.

Эффективные температуры на начальной стадии плавления при образовании двухфазной зоны близки и много меньше 2327 К из-за очень малой толщины двухфазного слоя и определяющего вклада в выходящее излучение более глубоких менее нагретых слоев.

В соответствии с проведенными расчетами после расплавления тонкого приповерхностного слоя двухфазная зона не наблюдается ни в процессе дальнейшего нагрева и увеличения толщины расплавленного слоя, ни при достижении квазистационарного состояния.

Согласно полученным результатам экспериментов, при плотности потока греющего излучения порядка 900...1000 Вт/см² изменение эффективных температур $T_{эф1}$ и $T_{эф2}$ на начальном участке плавления напоминало волну, состоящую из гребня и впадины. Начало плавления выражалось в замедлении изменения эффективных температур на восходящем участке волны, за которым следовало их уменьшение после достижения максимума. Иногда в экспериментах наблюдались два гребня и две впадины.

При более высоких значениях плотности потока (1600...2000 Вт/см²) волна исчезала, и на зависимостях эффективных температур от времени существовал лишь уступ, аналогичный показанному на рис. 2.

В экспериментах с нагревом исследуемых образцов сравнительно малыми плотностями потока порядка 500...600 Вт/см² удавалось получить протяженное плато плавления с $T_{эф1} \cong 2300$ К и $T_{эф2} \cong 2250$ К, причем эти значения эффективных температур были заметно выше, чем значения, полученные в тех же экспериментах при затвердевании расплава в процессе охлаждения.

Сопоставление результатов экспериментов с результатами расчетов позволяет сделать заключение о том, что в эксперименте также наблюдается образование двухфазной зоны на начальной стадии плавления на глубине, несколько меньшей глубины проникновения греющего лазерного излучения. Однако на значения измеренных пирометром эффективных температур оказывает влияние неравномерность плотности потока по диаметру пучка греющего излучения и шероховатость поверхности, обусловленная пористостью керамик. Волнообразный характер изменения эффективных температур в процессе плавления приповерхностной двухфазной зоны может быть обусловлен влиянием рассеяния из-за различия величин показателя преломления твердой фазы и образующихся частиц расплава. Математическая модель, использованная при проведении расчетов, рассеяние не учитывала.

Согласно полученным результатам расчета, в процессе охлаждения расплава имеет место другой характер образования двухфазной зоны. На рис. 3 представлены некоторые результаты расчета для образца Al₂O₃ толщиной 10 мм, нагреваемого потоком излучения CO₂ лазера плотностью 600 Вт/см². Показана лишь область толщиной 2 мм со стороны нагреваемой поверхности. Стадия нагрева не показана,

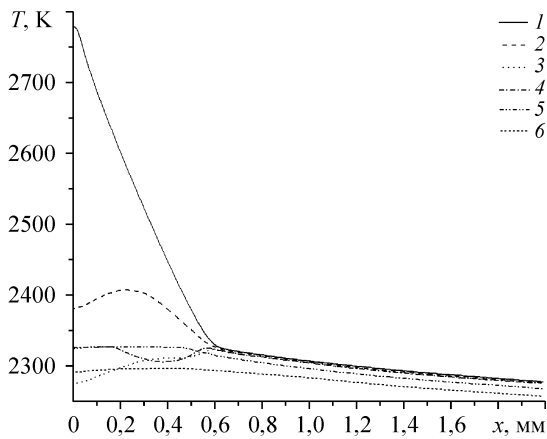


Рис. 3. Температурное распределение в приповерхностном слое в процессе охлаждения после нагрева плотностью потока 600 Вт/см^2 в течение 100 с.
 $t = 100$ (1), $100,1$ (2), $100,2$ (3), $100,3$ (4), $100,6$ (5), $100,8$ (6) с.

а первый представленный температурный профиль относится к моменту, соответствующему 100 с от начала нагрева, когда греющее лазерное излучение выключалось. В этот момент температурный профиль стал близок к квазистационарному, а толщина расплавленного слоя равнялась $0,625 \text{ мм}$. После выключения греющего излучения температура поверхности быстро уменьшается и через 130 мс становится меньше температуры плавления, хотя жидкое состояние остается. Минимальная температура поверхности примерно на 50 К ниже температуры плавления. Двухфазная зона появляется вблизи поверхности, когда с момента начала охлаждения прошло немногим больше 0,2 с. Ее протяженность увеличивается очень быстро. В момент 100,3 с ее толщина равняется 180 мкм, в момент 100,5 с она уже равна 340 мкм, а в момент 100,7 с двухфазная зона занимает почти весь слой, который был расплавлен перед началом охлаждения. Нужно отметить, что в момент 100,5 с тонкий слой твердой фазы появляется вблизи поверхности, но благодаря его высокой прозрачности он слабо влияет на теплоперенос в образце. Его температура близка к температуре затвердевания. Процесс полного затвердевания двухфазной зоны довольно продолжительный и занимает примерно 0,5 с. На рис. 4 показаны полученные результаты для зависимостей эффективных температур при различных длинах волн от времени в процессе охлаждения и затвердевания расплава. Видно, что после окончания плато затвердевания все эффективные температуры скачкообразно уменьшаются, причем чем меньше коэффициент поглощения образующейся твердой фазы, тем большая величина скачка имеет место. Из представленных на рис. 4 длин волн наименьшая величина коэффициента поглощения твердой фазы вблизи температуры плавления соответствует длине волны 3 мкм.

Были проведены две серии экспериментов по затвердеванию расплава в ходе процесса быстрого свободного охлаждения в воздухе из квазистационарного температурного состояния. Эти серии отличались временем нагрева и, соответственно, исходной толщиной расплава. В одной из серий экспериментов время нагрева составляло примерно 12 с, что позволяло получать толщину расплава в несколько десятых долей мм при плотностях потока греющего лазерного излучения порядка 1000 Вт/см^2 .

Рис. 4. Эффективные температуры в процессе охлаждения после нагрева плотностью потока 600 Вт/см^2 в течение 100 с.
 $\lambda = 0,5$ (1), 1 (2), 3 (3), 5 (4), 7 (5) мкм.

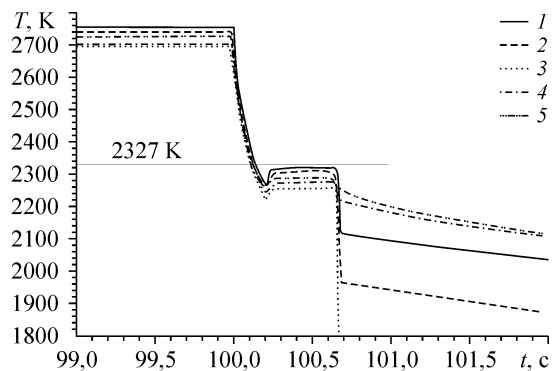


Рис. 5. Изменение эффективных температур в процессе короткого нагрева с $q = 900 \text{ Вт/см}^2$ и последующего охлаждения.

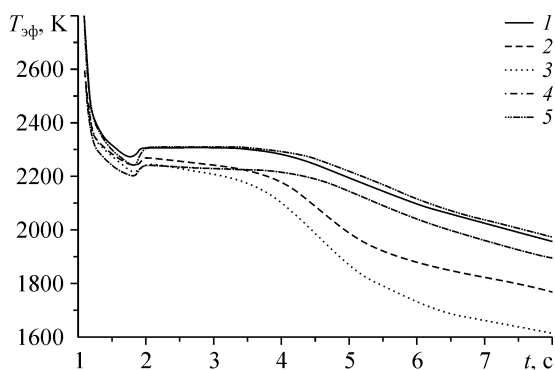
$T_{\text{эф1}}$ (1), $T_{\text{эф2}}$ (2), $T_{\text{эф(8 мкм)}}$ (3).

На рис. 5 в качестве примера показан результат при нагреве образца керамики Al_2O_3 плотностью потока 900 Вт/см^2 в течение 12 с. В этом эксперименте эффективные температуры

измерялись на длинах волн пирометра 0,55, 0,72 мкм и на длине волны спектрометра, равной 8,0 мкм, которая находится в области непрозрачности (большая величина k_λ). Видно, что начало затвердевания, если за него принять выход из переохлажденного состояния, приходится на момент, соответствующий 12,43 с. Окончание горизонтального участка плато затвердевания для длин волн 0,55 и 0,72 мкм приходится на 12,60 с, а для длины волны 8,0 мкм — на 12,86 с.

В других экспериментах образец из предварительно оплавленного порошка чистого оксида алюминия, который затвердел в окружении такого же порошка, нагревался концентрированным лазерным излучением в окружающей воздушной атмосфере в течение более длительного промежутка времени, порядка 2–3 мин при плотности потока примерно 1000 Вт/см^2 . В стационарном состоянии толщина расплава составляла 2–3 мм. На рис. 6 показаны результаты измерения яркостных температур для ряда длин волн, полученные в ходе процесса охлаждения расплава толщиной 3 мм после отключения греющего излучения. Поскольку в серии этих экспериментов имелись некоторые различия в величине плотности потока греющего излучения, участки нагрева на рис. 6 не представлены. Начало охлаждения приведено к одному и тому же моменту времени.

Из рис. 6 видно, что горизонтальное плато затвердевания наблюдалось для эффективных температур при длинах волн 0,55, 5,0 и 9,0 мкм. Его длительность была значительно больше, чем в случае тонкого расплава, и составляла около 2 с. В отличие от результатов численных расчетов, горизонтальные участки на термограммах охлаждения для яркостных температур на длинах волн 2 и 3 мкм, соответствующих наименьшим величинам коэффициента поглощения, отсутствовали. Эти участки были слабо наклонными. Не обнаружено и крутого уменьшения яркостных температур после окончания затвердевания, как получалось в результате численного моделирования. Проведенный анализ микроструктуры поперечного скола затвердевших расплавов (рис. 7) показал, что в случае, когда полная толщина



затвердевшего слоя составляла около 0,4 мм, затвердевший расплав представлял собой совокупность реечных кристаллов тригональной ориентации, причем рейки состояли

Рис. 6. Эффективные температуры при охлаждении и кристаллизации толстого слоя расплава ($\delta = 3 \text{ мм}$). $\lambda = 0,55$ (1), 2 (2), 3 (3), 5 (4), 9 (5) мкм.

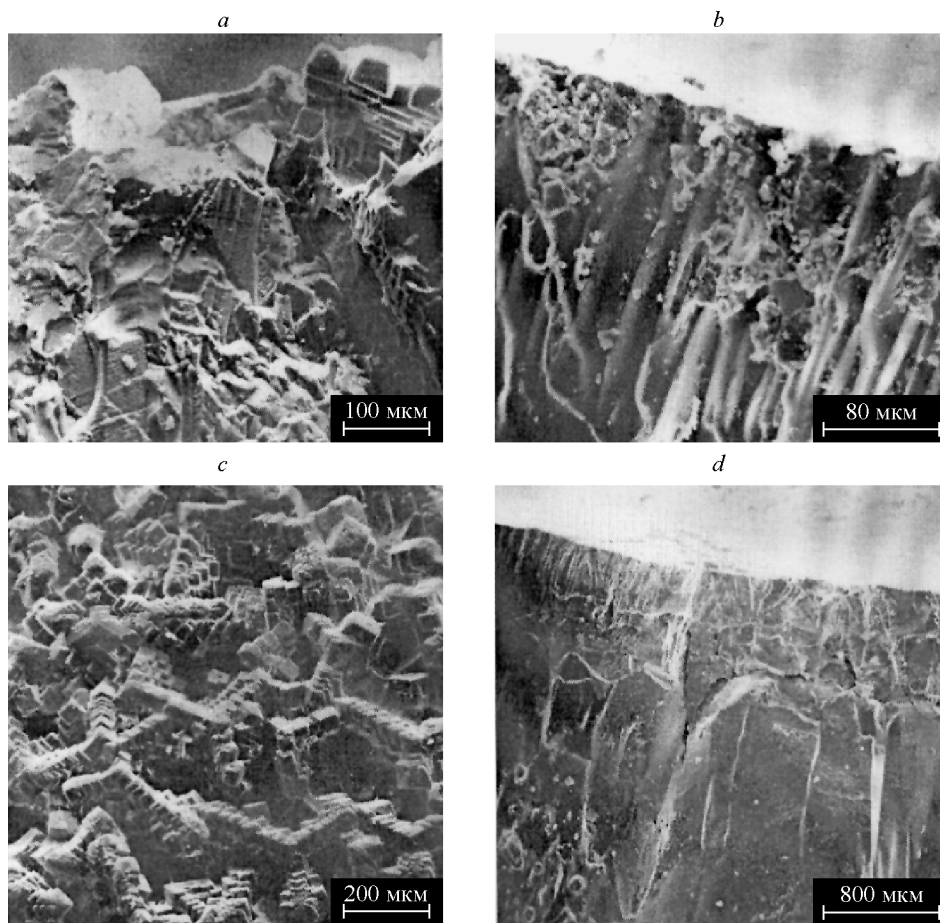


Рис. 7. Структура скола и поверхности закристаллизовавшегося слоя расплава Al_2O_3 .
Толщина — 0,4 (a, b), 4 (c, d) мм.

из элементарных кубических кристаллов. В промежутках между рейками были пустоты. В этом случае наиболее вероятным становилось гомогенное зародышеобразование. Из-за малой толщины весь слой расплава интенсивно охлаждался за счет объемного излучения, и скорость охлаждения много больше, чем в эксперименте с толстым слоем расплава. Переохлаждение вызывает объемное образование зародышей и рост зерен случайной ориентации. Весь слой в процессе кристаллизации представлял собой двухфазную зону. Это хорошо согласовалось с результатами расчетов.

Микроструктура закристаллизовавшегося толстого слоя расплава несколько отличалась. Приповерхностный слой толщиной примерно 450 мкм состоял из двух подслоев: верхний в ~ 250 мкм — дендритного строения (оси дендритов вытянуты в направлении, перпендикулярном поверхности) и нижний, состоящий из более изометрических частиц. За приповерхностным слоем следовала зона крупных столбчатых кристаллов, в большей или меньшей степени разориентированных относительно нормали к поверхности образца. Пустоты и микротрещины видны в обоих подслоях, и они также могли являться причиной рассеяния. Конечно, коэффициент рассеяния в двухфазной зоне и закристаллизовавшемся слое зависел от длины волны. Образование пустот и трещин связано с большим увеличением

(примерно на 30 %) плотности Al_2O_3 при затвердевании. В целом структура закристаллизовавшегося толстого слоя расплава отличается от структуры тонкого. Однако образование двухфазной зоны в процессе кристаллизации и в толстом слое имело место. Дендритный характер роста кристаллов в приповерхностном слое толщиной ~ 250 мкм говорит о том, что отдельные дендриты росли с поверхности вперед, в переохлажденный расплав, и вширь, в расплав, находящийся между отдельными дендритами. Именно в этом слое и наблюдалась двухфазная зона. Ее толщина определялась величиной коэффициента поглощения расплава в наиболее энергетически важной области спектра излучения, поскольку именно эта толщина, приблизительно равная обратной величине коэффициента поглощения, определяет интенсивность выходящего излучения. Переход от дендритного роста к росту примерно изометрических зерен связан с уменьшением скорости охлаждения в более глубоких слоях расплава. Здесь кристаллизация происходила без образования двухфазной зоны, ее характер был аналогичен характеру, имевшему место при выращивании кристаллов лейкосапфира.

Чтобы подтвердить возможность образования двухфазной зоны при быстрой кристаллизации других тугоплавких оксидов, были проведены эксперименты с кубическим оксидом циркония, стабилизированным 18 мол. % оксида кальция. Эти эксперименты проводились в вакууме и окружающей воздушной атмосфере. Отличие в результатах кристаллизации было обусловлено тем, что из-за потерь кислорода слой расплава и примыкающий к нему слой керамики в случае экспериментов в вакууме становились черными. После экспериментов отражение образца при комнатной температуре оставалось очень низким во всем исследованном спектральном интервале от 0,63 до 3,39 мкм. Это означает, что коэффициент поглощения в процессе нагрева в вакууме необратимо увеличился и материал стал практически непрозрачным. После экспериментов в воздухе цвет керамики и затвердевшего расплава не изменился. В ходе нагрева коэффициент поглощения, конечно, увеличивался, однако даже при предельной температуре 3400 К расплав оксида циркония в воздухе следует рассматривать как полупрозрачное вещество. Действительно, микрофотографии структуры показали, что примыкающий к поверхности слой толщиной около 70 мкм затвердевал в воздухе как отдельные дендритные кристаллы с размерами от 10 до 50 мкм звездообразной формы без какой-либо преимущественной ориентации с пустотами между ними. Это означает, что он кристаллизовался при объемном зародышеобразовании с существованием двухфазной зоны. Из-за высоких значений коэффициента поглощения при нагреве в вакууме затвердевание начиналось на поверхности, на которой переохлаждение было максимальным. Зерна росли внутрь, внешний, примыкающий к поверхности слой, наблюдавшийся при кристаллизации в воздухе, отсутствовал, и двухфазная зона также отсутствовала.

ВЫВОДЫ

Результаты проведенных экспериментов и численных расчетов показали, что в процессе быстрого нагрева оксида алюминия концентрированным излучением CO_2 лазера двухфазная зона образуется в начальной стадии плавления в приповерхностном слое, толщина которого определяется глубиной проникновения греющего излучения. При затвердевании в процессе свободного охлаждения расплава в окружающем воздухе также образуется двухфазная зона, но ее толщина определяется коэффициентом поглощения расплава при температуре плавления в наиболее энергетически важной для выходящего излучения области спектра. Наблюдаемое температурное плато в процессе затвердевания объясняется существованием двухфазной зоны. Однако такая двухфазная зона образуется не всегда

и не у всех оксидов. Ее образование зависит от величины коэффициента поглощения расплава, скорости охлаждения и самой величины температуры затвердевания, определяющей вклад объемного радиационного теплопереноса.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Chen S.H., Cho D.H., Kocamustafaogullary G.** Melting and solidification with internal radiative transfer A generalized phase change model // Inter. J. Heat Mass Transfer. 1983. Vol. 26. P. 621–633.
2. **Рубцов Н.А., Тимофеев А.М., Саввинова Н.А.** Комбинированный теплообмен в полупрозрачных средах. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2003. 198 с.
3. **Petrov V.A., Titov V.E., Vorobyev A.Yu.** Numerical simulation of concentrated laser radiation heating of refractory oxides // High Temperatures–High Pressures. 1999. Vol. 31. P. 267–274.
4. **Лингарт Ю.К., Петров В.А., Тихонова Н.А.** Оптические свойства лейкосапфира при высоких температурах. I. Область полупрозрачности // Теплофизика высоких температур. 1982. Т. 20, № 5. С. 872–880.
5. **Лингарт Ю.К., Петров В.А., Тихонова Н.А.** Оптические свойства лейкосапфира при высоких температурах. II. Свойства монокристалла в области непрозрачности и свойства расплава // Теплофизика высоких температур. 1982. Т. 20, № 6. С. 1085–1092.
6. **Krishnan S., Weber J. K. R., Shiffman R. A., Nordine P. C., Reed R. A.** Refractive Index of Liquid Aluminum Oxide at 0.6328 μm . // J. Amer. Ceram. Soc. 1991. Vol. 74. P. 881–883.
7. **Битюков В.К., Петров В.А.** Коэффициент поглощения расплава оксида алюминия // Прикладная физика. 2007. № 4. С. 18–34.
8. **Vorobyev A. Yu., Petrov V. A., Titov V. E., Chernyshev A. P.** Measurement of the Absorption Coefficient of Liquid Alumina by Thermal Wave Technique // High Temperatures — High Pressures. 1999. Vol. 31. P. 227–234.

Статья поступила в редакцию 12 декабря 2008 г.