

ИНСТИТУТ МЕХАНИКИ СПЛОШНЫХ СРЕД УРО РАН — ФИЛИАЛ
ФЕДЕРАЛЬНОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО БЮДЖЕТНОГО
УЧРЕЖДЕНИЯ НАУКИ ПЕРМСКОГО ФЕДЕРАЛЬНОГО
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО ЦЕНТРА УРАЛЬСКОГО ОТДЕЛЕНИЯ
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи



Мизёв Алексей Иванович

ТЕПЛОВАЯ И КОНЦЕНТРАЦИОННАЯ КОНВЕКЦИЯ
МАРАНГони В ЗАДАЧАХ С ПЛОСКОЙ И
ЦИЛИНДРИЧЕСКОЙ ГЕОМЕТРИЕЙ

01.02.05 — Механика жидкости, газа и плазмы

Диссертация на соискание учёной степени
доктора физико-математических наук

Пермь—2019

Оглавление

Введение	5
1 Термокапиллярная конвекция от затопленного локализованного источника тепла.	19
1.1 Экспериментальная установка и методики измерений.	26
1.2 Результаты экспериментов.	34
1.2.1 Структура конвективного течения.	34
1.2.2 Влияние конвективного движения на форму свободной поверхности.	41
1.2.3 Генерация поверхностных волн вблизи твердотельного источника.	45
1.3 Обсуждение результатов.	49
2 Концентрационно-капиллярная конвекция от затопленного локализованного источника массы.	58
2.1 Экспериментальная установка и методики измерений.	61
2.2 Результаты экспериментов.	64
2.3 Обсуждение результатов.	73
3 Концентрационно-капиллярная конвекция от локализованного источника массы при наличии адсорбированного слоя сурфактанта.	80
3.1 Экспериментальная установка и методики измерений.	90
3.2 Результаты экспериментов.	100
3.2.1 Нерастворимый сурфактант.	100
3.2.2 Растворимый сурфактант.	105
3.3 Обсуждение результатов исследования.	112

4	Взаимодействие термокапиллярного течения с адсорбированным слоем сурфактанта в геометрии Хеле-Шоу.	131
4.1	Экспериментальная установка и методики измерений.	132
4.2	Результаты экспериментов.	136
4.2.1	Общий обзор структуры течения.	136
4.2.2	Структура течения при $E > 1$ и методика измерения коэффициента поверхностной диффузии в газообразных слоях сурфактанта.	140
4.2.3	Структура течения при $0 < E \leq 1$ и положение застойной точки.	146
4.3	Обсуждение результатов.	155
5	Конвекция Марангони в плоском горизонтальном слое при наличии наклонного градиента температуры	158
5.1	Экспериментальная установка и методики измерений.	162
5.2	Результаты экспериментов.	169
5.2.1	Общий обзор структуры течения.	169
5.2.2	Карты режимов.	172
5.2.3	Приповерхностные режимы неустойчивости.	175
5.2.4	Режим дрейфующих ячеек Бенара-Марангони.	183
5.3	Обсуждение результатов.	187
6	Аккумуляция твердых включений тепловой конвекцией Марангони в жидком мостике	190
6.1	Экспериментальная установка и методики измерений.	198
6.1.1	Конструкция экспериментальной установки и ее особенности при использовании различных жидких сред.	198
6.1.2	Визуализирующие частицы.	204
6.1.3	Методы наблюдения и измерительные методики.	206
6.2	Результаты экспериментов.	207
6.2.1	Структура, область существования и условия формирования аккумуляционных структур.	207

6.2.2	Структура течения и распределение температуры в гидротермической волне и их роль в аккумуляции частиц.	218
6.2.3	Время формирования аккумуляционных структур в зависимости от свойств частиц.	222
6.2.4	Исследование влияния гравитации на формирование аккумуляционных структур.	226
6.3	Предлагаемый физический механизм формирования аккумуляционных структур.	230
6.4	Влияние поверхностно-активной примеси на структуру термокапиллярного течения и формирование аккумуляционных структур.	237
	Заключение	245
	Список литературы	251

Введение

Актуальность и степень разработанности темы исследования. Конвективное движение в жидкой среде играет определяющую роль в переносе тепла и массы в подавляющем большинстве природных явлений и технологических процессов. Взаимодействие жидкости с внешними силовыми полями, гравитационным или электромагнитным, может приводить к появлению объемных сил, приводящих среду в движение. В системах с межфазной границей конвективное движение может генерироваться поверхностными силами, возникающими при наличии градиентов поверхностного натяжения, обусловленных неоднородным распределением температуры или химического состава вдоль границы раздела. Возникающие вследствие действия поверхностных сил конвективные течения принято, в общем случае, называть конвекцией Марангони.

В отличие от объемных механизмов конвекции, широко распространенных в природных и в промышленных системах, от микро масштабов до масштабов астрономических объектов, поверхностные механизмы конвективного движения редко встречаются в природе, проявляя себя, в основном, в технологических процессах. В пользу этого говорит, например, тот факт, что модельные ситуации, традиционно изучаемые в межфазной гидродинамике, берут свое начало от конкретных технологических приложений. На Рис.0.1 представлены три основные модели, в рамках которых обычно исследуются структура и устойчивость конвективного течения Марангони. Первая из них, называемая жидким мостиком (см. Рис.0.1a), представляет собой плоский в цилиндрических координатах слой жидкости, вдоль свободной поверхности которого, лежащей в (z, φ) -плоскости, задан градиент температуры. Данная конфигурация применяется при моделировании конвективных процессов, имеющих место при выращивании кристаллов и очистке полупроводниковых материалов методом зонной плавки. Вторая модель, получившая название коаксиального

слоя (см. Рис.0.1б), также представляет собой плоский в цилиндрических координатах слой жидкости, но со свободной поверхностью, лежащей в горизонтальной (r, φ) -плоскости, вдоль радиального направления которой задан градиент температуры. Эта модельная ситуация была предложена для исследований конвективных процессов, возникающих при выращивании кристаллов методом Чохральского. Наконец, третья классическая постановка, представляющая собой горизонтальный слой со свободной верхней границей в плоской геометрии (см. Рис.0.1в), появилась как модельная ситуация конвективных процессов, происходящих в открытом методе Бриджмена, применяющегося при выращивании кристаллов и очистке полупроводниковых материалов. Следует упомянуть менее распространенную модель сферической свободной поверхности, применяемую при исследованиях конвективного течения Марангони в пузырях и каплях для исследований тепло- и массопереноса в процессах экстракции и флотации.

Именно прикладная составляющая исследований, направленных на получение новых материалов, дала во второй половине прошлого века начало для интенсивных исследований конвекции Марангони. С появлением космического материаловедения тематика получила дополнительный импульс развития, вызванный тем фактом, что, в силу негравитационного характера, поверхностные механизмы конвекции являются единственными источниками конвективного тепло- и массопереноса в условиях микрогравитации. Исследования, проведенные в рамках указанных моделей, позволили в последние три-четыре десятка лет изучить основные физические механизмы, определяющие сценарий неустойчивости и структуру вторичного течения в каждой конкретной конфигурации, и определить области существования различных типов неустойчивости в пространстве безразмерных параметров. Результаты исследований легли в основу разработок и рекомендаций с целью улучшения контроля и управления указанными выше технологическими процессами. Несмотря на огромное количество публикаций по данной тематике и успехи в практической реализации результатов исследований, многие важные вопросы остались за рамками традиционных моделей. Это обусловлено идеализацией реального явления или процесса в рамках любой модели.

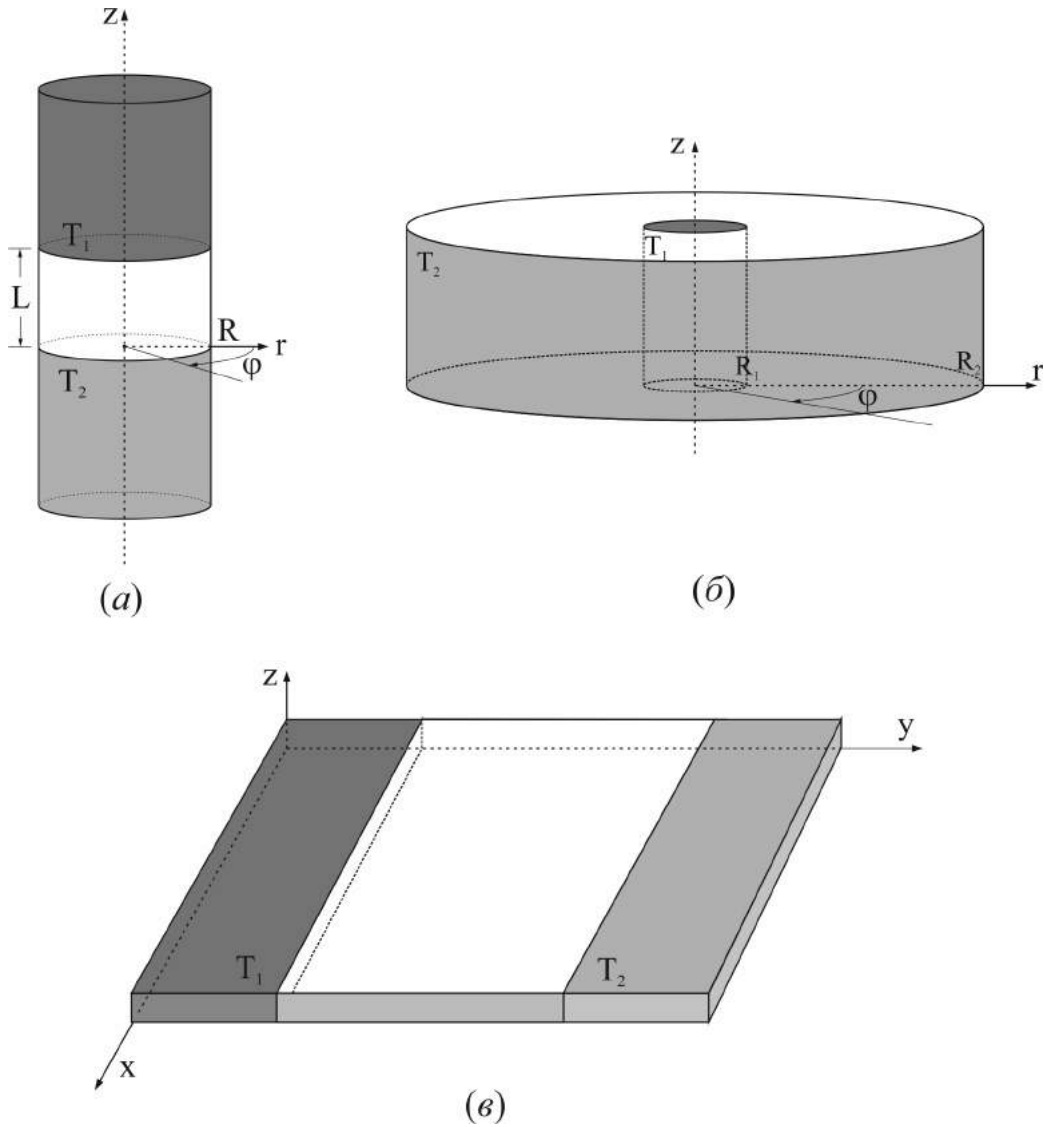


Рис. 0.1. Традиционные модели, используемые при исследовании проблем структурообразования и устойчивости конвекции Марангони: (а) – жидкий мостик, (б) – коаксиальный слой, (в) – плоский слой.

К таким идеализациям относится, например, представление о граничных условиях на межфазной поверхности. В большинстве исследований термокапиллярной конвекции граница раздела жидкость-газ или жидкость-жидкость полагается свободной от примесей. Однако, чистые, однородные по составу жидкости являются скорее исключениями, встречающимися в научных исследованиях. Тем не менее, даже в этом случае всегда остается проблема остаточных примесей, обусловленных некачественной подготовкой исследуемой среды или экспериментальной установки. В различных технологических процессах жидкие среды либо изначально

но многокомпонентные, либо не обладают достаточной степенью чистоты состава. В такой ситуации один из компонентов оказывается поверхностно-активным, адсорбируясь на межфазной поверхности, что способно критическим образом изменить не только интенсивность и структуру конвективного течения и, следовательно, интенсивность тепло- и массопереноса, но и тип граничного условия на межфазной границе. Данная проблема была исследована на примере ряда частных задач, в основном теоретически. Систематические экспериментальные исследования, направленные на изучение физических механизмов взаимодействия поверхностных течений с адсорбированным слоем и их роли в неустойчивости конвективного движения, в научной литературе отсутствуют. В диссертации проблема исследуется экспериментально для ряда конфигураций.

Другим примером идеализации является формулировка температурных условий при исследовании тепловой конвекции Марангони в плоском слое. Традиционно рассматриваются две модельные ситуации. Если градиент температуры перпендикулярен слою жидкости, говорят о задаче Бенара-Марангони. В этом случае подогреваемый снизу слой становится неустойчивым только по достижении разности температур на границах слоя некоторого порогового значения. Если градиент температуры направлен вдоль слоя, то течение возникает беспороговым образом при сколь угодно малом значении числа Марангони. В этом случае говорят о неустойчивости Марангони или термокапиллярной неустойчивости. Описанные ситуации являются идеализированными, и их реализация в лабораторных условиях требует применения специальных экспериментальных методик. Например, в задаче Бенара-Марангони теплоток через боковые границы, разница теплопроводностей материала стенок и жидкости, а также наличие мениска могут приводить к формированию горизонтального градиента температуры в пристеночных областях. В случае неустойчивости Марангони теплоотдача со свободной поверхности генерирует нежелательный вертикальный градиент температуры в слое жидкости. В реальных технологических процессах наличие одновременно вертикального и горизонтального градиентов температуры является, скорее, нормой. Проблема устойчивости слоя в наклонном градиенте температуры была ранее исследована

дована только теоретически и в отсутствие гравитации. Систематическое экспериментальное исследование, результаты которого представлены в диссертации, было выполнено впервые.

Большинство исследований конвекции Марангони относятся к тепловому случаю, когда движение жидкости на границе раздела обусловлено зависимостью поверхностного натяжения от температуры. Работ, посвященных изучению концентрационной конвекции Марангони, возникающей вследствие зависимости поверхностного натяжения от концентрации поверхностно-активной примеси на границе раздела, значительно меньше. С одной стороны, это связано с трудностями создания, поддержания и измерения постоянного градиента концентрации. С другой стороны, в научной литературе до сих пор можно встретить мнение, что результаты исследований тепловой задачи можно распространить на концентрационный случай, поскольку, формально, ситуации идентичны с точностью до замены переменной в уравнении для зависимости коэффициента поверхностного натяжения от температуры или концентрации. Такой упрощенный взгляд не учитывает ряд важных различий. Во-первых, диффузия примеси в жидкости происходит намного медленнее диффузии тепла, вследствие чего концентрационное возмущение существует значительно дольше температурного. Распределение концентрации оказывается «вмороженным» в движущуюся жидкость, в то время как распределение температуры «вморожено» в пространство и слабо связано с движущейся средой. Второе различие связано с накоплением молекул ПАВ на поверхности раздела в результате процессов адсорбции и десорбции. Такой поверхностный слой необходимо описывать отдельным уравнением, учитывающим перенос молекул поверхностным течением, а также двумерную диффузию и двумерную вязкость в слое сурфактанта. Учитывая перечисленные различия, следует ожидать появления новых эффектов в концентрационном случае, не имеющих термокапиллярных аналогов. В диссертации этот вопрос рассматривается на примере сравнения задач о затопленном источнике тепла или массы.

Целью диссертационного исследования является изучение условий возникновения, структуры и физических механизмов гидродинамической неустойчивости тепловой и концентрационной конвекции Марангони в раз-

личной геометрии (плоская и цилиндрическая) для различных жидких систем (однородная жидкость, бинарные смеси, разбавленные суспензии) и для различных способов создания неоднородности на межфазной поверхности. Для достижения поставленной цели были решены следующие **задачи**:

- Исследована структура и устойчивость теплового (гравитационного и Марангони) конвективного течения, генерируемого затопленным локализованным источником тепла, в модели полубесконечного слоя жидкости для двух типов источника: непроницаемый источник с твердыми границами или проницаемый источник, индуцированный излучением.
- Исследована структура и устойчивость концентрационного (гравитационного и Марангони) конвективного течения от локализованного источника слаборастворимого ПАВ, расположенного вблизи свободной поверхности жидкости.
- Исследованы условия возникновения, структура и устойчивость концентрационного течения Марангони от локализованного источника массы, расположенного на поверхности цилиндрического глубокого слоя жидкости, поверхность которого содержит адсорбированный слой сурфактанта.
- Исследованы условия возникновения, структура и устойчивость двумерного термокапиллярного течения на поверхности, содержащей слой нерастворимого сурфактанта.
- Исследована устойчивость плоского горизонтального слоя жидкости со свободной верхней границей при наличии наклонного градиента температуры.
- Исследовано явление аккумуляции твердых включений тепловой конвекцией Марангони в жидком мостике.

Научная новизна полученных в диссертационном исследовании результатов:

- Впервые экспериментально исследована структура и устойчивость конвективного течения от локализованного источника тепла в модели полубесконечного слоя. Показано, что такая конфигурация обладает наибольшим потенциалом устойчивости по сравнению с другими моделями в геометрии коаксиального слоя.
- При исследовании тепловой конвекции Марангони от затопленного локализованного источника тепла впервые обнаружена неустойчивость в виде поверхностных волн, предсказанная ранее в теоретических исследованиях, но не наблюдавшаяся в эксперименте. Показано, что в такой постановке поверхностные волны являются единственным типом возможной гидродинамической неустойчивости.
- Сформулирована корректная постановка экспериментального исследования концентрационной (гравитационной и Марангони) конвекции от затопленного источника массы, что позволило впервые объяснить причины возникновения колебательного режима конвекции в таких системах.
- Впервые показана абсолютная неустойчивость дивергентного типа течения в жидкости, на поверхности которой содержится адсорбированный слой молекул сурфактанта. Предложен физический механизм неустойчивости, заключающийся в асимметрии граничных условий на межфазной поверхности для потенциальной и вихревой составляющих скорости.
- Впервые предложена и реализована экспериментальная постановка задачи о взаимодействии термокапиллярного течения с адсорбированным слоем нерастворимого сурфактанта, допускающая сравнение с результатами теоретических исследований. Показана некорректность существующей теоретической модели. Предложено аналитическое описание полученных в эксперименте данных.
- Предложен и реализован метод измерения коэффициента поверхностной диффузии сурфактанта, базирующийся на измерении скорости

термокапиллярного течения в застойной зоне. Впервые проведены измерения данного параметра для слоев, находящихся в газовом фазовом состоянии. Показано, что величина коэффициента поверхностной диффузии на два-четыре порядка выше значений, обычно используемых в теоретических исследованиях.

- Впервые проведено экспериментальное исследование устойчивости плоского горизонтального слоя жидкости со свободной верхней границей под действием наклонного градиента температуры. Обнаружен новый тип неустойчивости и предложен физический механизм, объясняющий её возникновение.
- Впервые проведено систематическое экспериментальное исследование явления аккумуляции твердых включений тепловой конвекцией Марангони в жидком мостике в наземных условиях и в условиях микрогравитации. Предложен физический механизм взаимодействия конвективного течения с твердыми включениями, объясняющий специфику формирования и форму аккумуляционных структур.

Теоретическая значимость диссертационного исследования состоит в получении систематических экспериментальных результатов, имеющих фундаментальное значение для понимания процессов тепло- и массопереноса в системах жидкостей с межфазной границей, а также в создании экспериментальной базы данных, что позволило провести верификацию существующих теоретических моделей и создало основу для проведения новых теоретических исследований. В частности:

- Впервые в задачах о термокапиллярной конвекции показана возможность развития предсказанной ранее в теоретических работах неустойчивости в виде поверхностных волн.
- Предложенный в работе физический механизм возникновения колебательного режима конвективного течения в задаче о затопленном источнике слаборастворимого ПАВ лег в основу модели, использованной в теоретическом исследовании, результаты которого показали количественное согласие с данными экспериментов.

- Впервые продемонстрирован механизм неустойчивости конвективного течения в системах с сурфактантом, состоящий в асимметрии граничного условия на поверхности жидкости для потенциальной и вихревой составляющих скорости, что может быть использовано при теоретическом и численном моделировании таких систем.
- Результаты экспериментального исследования взаимодействия термокапиллярного течения с адсорбированным слоем ПАВ в геометрии Хеле-Шоу показали некорректность некоторых приближений в существующей теоретической модели и инициировали проведение теоретического исследования, результаты которого продемонстрировали отличное согласие с экспериментом.
- Обширная база экспериментальных данных и предложенный физический механизм аккумуляции твердых включений были использованы при верификации теоретических моделей и результатов численного моделирования различными исследовательскими группами.

Полученные в диссертационном исследовании результаты и разработанные экспериментальные методики имеют **практическую значимость** и могут представлять практический интерес для научных сотрудников, занимающихся экспериментальными исследованиями в области межфазной гидродинамики, а также для разработчиков технологических процессов выращивания монокристаллов и очистки полупроводниковых материалов. В частности:

- Предложенный и реализованный в работе метод измерения коэффициента поверхностной диффузии сурфактанта может быть использован в лабораториях физико-химического профиля для определения данного параметра в разреженных слоях, находящихся в газовом фазовом состоянии, для которых этот метод на сегодняшний день является единственным.
- Результаты исследования устойчивости конвективного течения на поверхности, содержащей адсорбированный слой сурфактанта, объясняют формирование тугоплавких острых выступов на фронте плавления.

ния поликристаллической заготовки, рост которых наблюдается при выращивании монокристаллов некоторых веществ методом плавающей расплавленной зоны.

- Новый тип неустойчивости, обнаруженный при исследовании устойчивости плоского горизонтального слоя в наклонном градиенте температуры, и предложенный механизм ее возникновения позволяют объяснить появление приповерхностных конвективных структур, наблюдающихся в расплавах некоторых веществ в процессе выращивания монокристаллов методом Чохральского.

Методология и методы диссертационного исследования. Все основные результаты, представленные в диссертационном исследовании, получены с помощью различных современных экспериментальных методик как традиционно применяемых в экспериментальной гидродинамике, так и оригинальных, разработанных и реализованных автором работы. Для визуализации распределения концентрации растворенной примеси применялась оптическая интерферометрия. Для визуализации структуры течения в жидкость добавлялись светорассеивающие частицы, и применялась подсветка интересующей области световым ножом, сформированным лазерным излучением. Для локальных измерений скорости движения жидкости в случае сильно нестационарных потоков применялся термоанемометрический датчик собственной разработки. Видеокамера с матрицей чувствительной в инфракрасном диапазоне использовалась для измерений распределения температуры вдоль поверхности жидкости. В отдельных случаях локальные измерения температуры жидкости или твердой границы кюветы проводились термодатчиками. Для измерения профиля поверхности жидкости применялся разработанный автором оптический метод сканирующей щели, основанный на анализе искажений формы фронта волны, отраженной от деформированной поверхности. Измерения поверхностного натяжения исследуемых жидкостей проводились методом отрыва кольца на коммерческом тензиометре. Исследования поверхностных свойств сурфактантов были проведены в лотке Ленгмюра, оснащенной системой подвижных барьеров, с измерением поверхностного

давления методом пластинки Вильгельми.

Положения, выносимые на защиту:

- Поверхностные волны являются наиболее опасным типом неустойчивости тепловой (гравитационной и Марангони) конвекции от затопленного локализованного источника тепла с непроницаемыми границами в модели полубесконечного слоя жидкости.
- Структура и устойчивость тепловой (гравитационной и Марангони) конвекции от затопленного локализованного источника тепла в модели полубесконечного слоя жидкости определяется граничным условием (проницаемый или непроницаемый для потока) на поверхности источника. Течение обладает наибольшим потенциалом устойчивости в случае проницаемого источника тепла.
- Соотношение вкладов гравитационного и концентрационно-капиллярного механизмов формирования конвективного движения определяет режим, колебательный или стационарный, конвективного движения в задаче о затопленном локализованном источнике ПАВ.
- Асимметрия граничных условий для потенциальной и вихревой составляющей скорости на межфазной поверхности является основной причиной неустойчивости конвективного течения в системах жидкостей с границей раздела, содержащей сурфактант.
- Структура термокапиллярного течения на поверхности, содержащей нерастворимый сурфактант, полностью определяется величиной параметра упругости, равного отношению приращений поверхностного натяжения за счет концентрационного и теплового механизмов Марангони. Положение застойной точки зависит от величины параметра упругости линейно, а не по корневому закону, как было получено ранее в теоретических исследованиях.
- Измерение скорости термокапиллярного течения жидкости в области застойной зоны может быть использовано для расчета коэффициента поверхностной диффузии сурфактанта.

- Деформация поперечного профиля температуры термокапиллярным течением является причиной стабилизации неустойчивости Бенара-Марангони и возникновения приповерхностных типов неустойчивости в задаче об устойчивости плоского горизонтального слоя жидкости под действием наклонного градиента температуры.
- Поперечный дрейф частиц в сдвиговом потоке и резонансная корреляция орбитального движения частицы и азимутального движения гидротермической волны являются основным механизмом и необходимым условием формирования аккумуляционных структур, наблюдающихся в колебательном режиме термокапиллярной конвекции в жидком мостике.
- Аккумуляция твердых включений термокапиллярным течением в жидком мостике является гравитационно-независимым явлением и наблюдается в условиях микрогравитации.

Степень достоверности представляемых результатов обеспечивается тщательной разработкой методик проведения эксперимента, применением современных экспериментальных методов визуализации и измерения физических величин, воспроизводимостью результатов наблюдений и измерений, а также сравнением, где возможно, полученных результатов с результатами имеющихся, теоретических и экспериментальных, исследований.

Апробация результатов исследования. По теме диссертации опубликовано 68 печатных работ, из них 13 статей [1–13] в журналах, входящих в перечень рецензируемых научных изданий, установленный Министерством образования и науки Российской Федерации для представления результатов докторских диссертаций, 13 статей в сборниках статей и трудах конференций [14–26] и 42 публикации в тезисах конференций.

Результаты диссертационного исследования докладывались на следующих научных конференциях и семинарах:

Conference of International Marangoni Association “Interfacial Fluid Dynamics and Processes” (1st, Marburg, Germany, 2001; 2nd, Brussel, Belgium, 2004; 3rd,

Florida, USA, 2006; 4th, Tokyo, Japan, 2008; 5th, Florence, Italy, 2010; 6th, Haifa, Israel, 2012; 7th, Vienna, Austria, 2014; 8th, Bonn, Germany, 2016);
 Зимняя школа по механике сплошных сред (14-я 2005, 15-я 2007, 16-я 2009, 17-я 2011, 18-я 2013, 19-я 2015, 20-я 2017, г. Пермь);
 Gordon Research Conference “Engineering Sciences for Space Exploration” (2005, Les Diablerets, Switzerland);
 ELGRA Biennial Meeting and General Assembly (2005, Greece);
 Joint International Topical Team Meeting "Fluid Physics-Thermocapillary Convection“, ESTEC (2006, Noordwijk);
 Всероссийская конференция с участием зарубежных ученых «Задачи со свободными границами: теория, эксперимент и приложения», (3-я 2008, 4-я 2011, 5-я 2014, г. Бийск, 6-я 2017, г. Барнаул);
 11th National Congress on Theoretical and Applied Mechanics (2009, Borovets, Bulgaria);
 Summer School - Conference «Advanced Problems in Mechanics» (XXXVIII, 2010, St. Petersburg; XXXIX, 2012, St. Petersburg);
 X Всероссийский съезд по фундаментальным проблемам теоретической и прикладной механики (ВСФПТМ) (Нижний Новгород, 2011);
 XI Всероссийский съезд по фундаментальным проблемам теоретической и прикладной механики (ВСФПТМ) (Казань, 2015);
 Пермский городской гидродинамический семинар им. Г.З. Гершуни и Е.М. Жуховицкого под руководством проф. Т.П. Любимовой;
 Семинар Института механики сплошных сред УрО РАН под руководством академика РАН В.П. Матвеевко.

Личный вклад автора. Работы [1–3, 9] выполнены автором лично и без соавторов. В работе [4–7] автором выполнена вся экспериментальная часть и обработка результатов, интерпретация результатов и написание статьи выполнены совместно с соавторами. В работе [8] автором выполнена вся экспериментальная часть, теоретическая часть и численные расчеты выполнены соавтором Бирихом Р.В., интерпретация результатов и написание статьи выполнены совместно с соавтором. В работе [10, 11] автору принадлежит постановка задачи, руководство и участие в проведении экспериментов, основная часть экспериментов проведена соавтором Трофименко

А.И., обработка и интерпретация результатов выполнены совместно с соавторами. В работе [12] автору принадлежит постановка задачи, руководство и участие в проведении экспериментов, основная часть экспериментов проведена соавтором Трофименко А.И., теоретическая часть и численные расчеты выполнены соавтором Брацуном Д.А., обработка и интерпретация результатов выполнены совместно с соавторами. В работе [13] автору принадлежит постановка задачи и руководство в проведении экспериментов, экспериментальная часть выполнена соавтором Шмыровым А.В., обработка и интерпретация экспериментальных результатов выполнены совместно с соавтором Шмыровым А.В., теоретическая часть выполнена Брацуном Д.А., численные расчеты выполнены Деминым В.А. и Петуховым М.И.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, 6 глав, заключения и списка литературы, включающего 239 наименований. Работа содержит 84 рисунков и 6 таблиц. Общий объем диссертации составляет 277 страниц.

Благодарности. Автор выражает глубокую признательность своим Родителям Мизёву Ивану Даниловичу и Мизёвой Инессе Ефимовне и своим Учителям Сергею Рудольфовичу Косвинцеву и ныне покойному Юрию Клавдиевичу Братухину за огромное терпение при воспитании автора, как личности и как исследователя. Особая благодарность Мизёвой Ирине Андреевне за неизменную поддержку по жизни и неоценимую помощь в процессе оформления диссертации. Автор благодарен другу и соавтору профессору Дитриху Швабе за плодотворное сотрудничество и поддержку во время работы в университете г.Гиссен (Германия). Автор также выражает слова благодарности соавторам и коллегам Костареву Константину Геннадьевичу, Бириху Рудольфу Вольдемаровичу, Шмырову Андрею Викторовичу, Брацуну Дмитрию Анатольевичу, Демину Виталию Анатольевичу, Пшеничникову Александру Федоровичу за плодотворное сотрудничество в научных исследованиях и поддержку при завершении настоящей работы.

1. Термокапиллярная конвекция от затопленного локализованного источника тепла.

В первых трех главах диссертации проблема структуры и устойчивости конвективного течения Марангони будет рассмотрена в цилиндрической геометрии. Известны две модельные постановки в такой геометрии, различающиеся положением свободной поверхности. В первой из них граница раздела расположена вертикально в (z, φ) -плоскости, а конвективное течение генерируется аксиально направленным градиентом температуры. Такая конфигурация, получившая название «жидкий мостик», будет подробно рассмотрена в Главе 6. Во второй модели, которая будет рассмотрена ниже, свободная поверхность находится в горизонтальной (r, φ) -плоскости, ограничивая сверху цилиндрический слой жидкости. Такая конфигурация получила в литературе название «коаксиальный слой». Градиент температуры в такой модели ориентирован вдоль радиальной координаты, в результате чего в слое развивается стационарное, осесимметричное термокапиллярное течение.

Интерес к такой модельной ситуации возник в связи с необходимостью описания конвективных течений в расплавах полупроводниковых и металлических материалов, имеющих место в ряде технологических процессов. Конвективное движение способно существенно изменять интенсивность и направление тепло- и массопереноса в таких системах, влияя, тем самым, на качество конечного продукта. Примером такого влияния является технология выращивания кристаллов по методу Чохральского. В цилиндрический тигель из тугоплавкого материала помещается расплав. Затравка из монокристалла, имеющая температуру ниже точки плавления, приводится в центре тигеля в контакт с поверхностью расплава, что ведет к кристаллизации части материала. Вертикальное перемещение затравки, синхронизированное со скоростью фронта кристаллизации, позволяет осуществлять равномерный рост монокристалла с заданной ориентацией кри-

сталлической решетки. Наряду с радиационным механизмом теплоотдачи, возникающим вследствие высоких температур обсуждаемых процессов, важную роль играет и конвективный механизм. Наличие радиального перепада температуры между стенками тигеля и растущим кристаллом приводит к развитию интенсивной тепловой конвекции Марангони. Нарушение осевой симметрии течения или его стационарности вследствие неустойчивости изменяет тепловые условия на фронте кристаллизации, что может привести к пространственным или временным вариациям скорости роста кристалла. Это, в свою очередь, ведет к нарушениям формы растущего кристалла или неравномерному распределению примеси в примесных полупроводниковых системах. Другим примером является создание расплавленной ванны при локальном разогреве материала лазерным излучением или электронным пучком. Таким способом, например, осуществляется очистка ряда тугоплавких металлов. Создание зоны локального разогрева приводит к испарению примесей с более низкой, чем у основного металла, температурой плавления, после чего очищенная часть расплава отводится в кристаллизатор, а на ее место подводится новая порция материала. Большие градиенты температуры, возникающие вдоль свободной поверхности, генерируют интенсивное термокапиллярное течение, играющее, наряду с излучением, основную роль в тепло- и массопереносе в условиях небольших размеров расплавленной зоны. Структура течения будет определять как распределение примесей в объеме, так и интенсивность их переноса через межфазную поверхность, меняя, тем самым, эффективность процесса очистки материала. В последние годы получила широкое распространение технология изготовления металлических деталей сложной формы в процессе послойной 3D печати. В одном из вариантов такого процесса сфокусированный пучок лазерного излучения расплавляет выделенные участки тонкого слоя металлического порошка. Нанесение следующего слоя порошка и создание в нем расплавленных участков позволяет послойно сформировать объект необходимой формы. Благодаря малым размерам расплавленной зоны и малому времени воздействия излучения основную роль в формировании движения жидкости играет конвекция Марангони. Причем в рассматриваемой ситуации наличие примесей может менять знак направления движе-

ния на поверхности за счет одновременного действия термокапиллярного и концентрационно-капиллярного механизмов. Интенсивность, направление и осевая симметрия конвективного течения будут во многом определять глубину зоны плавления и горизонтальные размеры расплавленной ванны, а, следовательно, качество и точность изготовления детали.

Устойчивость и структура рассматриваемого течения определяется величиной числа Марангони и соотношением геометрических размеров слоя

$$Ma = \frac{\sigma' Bh^2}{\eta\chi}; A = \frac{h}{l}.$$

Здесь σ' - коэффициент температурной зависимости поверхностного натяжения, $B = \Delta T/l$ - градиент температуры вдоль свободной поверхности с характерным горизонтальным размером l , h - вертикальный размер слоя, η и χ - коэффициенты динамической вязкости и температуропроводности жидкости.

На сегодняшний день наиболее исследованным является случай $A \ll 1$, т.е. плоского коаксиального слоя, глубина которого много меньше его горизонтального размера. Задача об устойчивости основного течения [27, 28] в такой постановке была решена теоретически М. Смитом и С. Дэвисом [29, 30]. Авторами было показано, что в слое с деформируемой свободной поверхностью и в слое с плоской границей раздела неустойчивость наступает вследствие различных физических механизмов. В первом случае [30] течение становится неустойчивым за счет взаимодействия сдвигового течения в объеме с деформациями поверхности жидкости. В результате на границе раздела развивается поверхностная волна, распространяющаяся в направлении термокапиллярного течения. В случае недеформируемой границы [29] неустойчивость конвективного течения развивается в силу взаимодействия продольного конвективного течения с вертикальным распределением температуры, которое, в свою очередь, появляется благодаря наличию продольного, термокапиллярного и возвратного, движения жидкости. В результате в объеме развиваются гидротермические волны, распространяющиеся навстречу термокапиллярному течению под некоторым углом к температурному градиенту. Вдоль такой волны наблюдается периодиче-

ское изменение температуры и скорости жидкости. Угол между волновым вектором и градиентом температуры зависит от числа Прандтля $Pr = \nu/\chi$ и меняется от почти 90° в жидких металлах до $20 - 30^\circ$ в обычных жидкостях. Позднее [31–36] структура вторичного течения была уточнена в рамках нелинейной теории устойчивости и численных экспериментов.

Несмотря на то, что в теоретическом исследовании был рассмотрен бесконечный слой в плоской геометрии, экспериментально неустойчивость в виде гидротермической волны была обнаружена в слоях конечного размера как в цилиндрической [37–40], так и в плоской геометрии [41, 42]. Пространственно-временные характеристики гидротермических волн (частота, длина волны, ориентация волнового вектора относительно градиента температуры), измеренные в слоях различной конфигурации, оказались одинаковыми и хорошо согласовывались со значениями, предсказываемыми теорией. Таким образом, обнаруженные М. Смитом и С. Дэвисом [29] гидротермические волны оказались универсальным сценарием неустойчивости, не зависящим от геометрии поверхности и от ее расположения относительно силы тяжести. В случае жидкого мостика гидротермические волны оказались единственно возможным механизмом неустойчивости [43] (см. Главу 6). Отличия, обнаруженные в экспериментах с плоским, коаксиальным и цилиндрическим слоями, состояли лишь в форме волнового фронта, что отражает особенности геометрии каждой из исследованных моделей. Так в случае коаксиального слоя необходимость сохранения неизменного угла между волновым вектором и градиентом температуры приводит к развитию волны спиральной формы [39]. В отличие от плоской геометрии, в коаксиальном слое, вследствие кривизны, температура в радиальном направлении меняется неравномерно, что приводит к наибольшим значениям градиента температуры вблизи центра. Как следствие неустойчивость в такой конфигурации развивается всегда от центра, постепенно распространяясь на весь слой [44, 45]. Наличие кривизны приводит также к асимметрии относительно смены направления градиента температуры [44]. В случае более холодного центра гидротермическая волна занимает весь слой и остается устойчивой в широком диапазоне чисел Марангони. При смене направления градиента температуры распространение волны к центру слоя

сопровождается сокращением предоставленного ей пространства, что приводит к ее неустойчивости [39, 46].

Поскольку теоретически проблема устойчивости была рассмотрена в отсутствие объемных сил, то наилучшее согласие наблюдается с экспериментами в тонких слоях и в условиях микрогравитации [47]. В более толстых слоях вклад гравитационного механизма конвекции становится существенным. При достижении динамическим числом Бонда

$$Bo_{dyn} = \frac{\rho g \beta_T h^2}{\sigma_T} \quad (1.1)$$

(здесь ρ и β_T - плотность и коэффициент теплового расширения жидкости, соответственно, g - ускорение свободного падения), показывающим относительный вклад гравитационного и термокапиллярного механизмов, величины ~ 0.2 наиболее опасными становятся стационарные возмущения, приводящие к развитию стационарных конвективных валов.

Экспериментальные исследования [48] и численные расчеты [49–51] устойчивости термокапиллярного течения в тонком коаксиальном слое в жидкостях с малыми числами Прандтля $Pr \sim O(10^{-2})$ позволили объяснить появление так называемых спицевидных структур (spoke patterns), наблюдающихся на поверхности расплавов в процессе выращивания кристаллов по методу Чохральского [52]. При определенных условиях на поверхности расплава формировалась температурная волна, распространяющаяся в азимутальном направлении. Исследователи показали, что данные структуры являются гидротермической волной, волновой вектор которой, в соответствии с предсказаниями М. Смита и С. Дэвиса, ориентирован перпендикулярно градиенту температуры.

В отличие от гидротермических волн, неустойчивость в виде поверхностной волны [30] не была обнаружена в экспериментальных исследованиях. Обычно это связывают с тем фактом, что, согласно теории Смита и Дэвиса, поверхностные волны являются наиболее опасными только в области очень малых чисел Прандтля, что соответствует жидким металлам. Однако большое поверхностное натяжение таких сред не позволяет развиваться деформационным возмущениям. В обычных жидкостях (область больших чисел Прандтля), обладающих меньшим поверхностным натяжением, дан-

ная мода неустойчивости перестает быть наиболее опасной, уступая место гидротермическим волнам. В серии экспериментальных работ [45, 53, 54] было показано, что в закритической для гидротермических волн области чисел Марангони наблюдается формирование поверхностных возмущений вблизи горячего центра слоя, распространяющихся в азимутальном направлении. При этом гидротермические волны независимо существовали вблизи холодной внешней границы, не взаимодействуя с поверхностной модой. Данная ситуация будет более подробно рассмотрена в разделе 1.3 при обсуждении результатов.

Модель коаксиального слоя была исследована также для диапазона аспектных соотношений $A \geq 1$, соответствующего короткому (слои диаметром порядка 1 см) и глубокому слою [55–60]. В этом случае основное термокапиллярное течение становится неустойчивым по отношению к колебательной моде, в результате чего возникает азимутальная волна, вдоль которой периодически меняется скорость жидкости и температура. Такой колебательный режим наблюдался как в наземных экспериментах, так и в опытах в условиях микрогравитации. Несмотря на явное сходство с гидротермической волной, исследователи [57, 59, 60] предположили наличие иного механизма, основанного на деформациях поверхности. В качестве обоснования было указано на наличие деформаций поверхности и зависимость критического числа Марангони от аспектного соотношения. Следует отметить некорректность доводов, так как и тот и другой факт неоднократно отмечался при исследовании гидротермических волн [45, 53, 54].

В первых трех главах диссертации проблема устойчивости конвективного течения в коаксиальной геометрии будет рассмотрена в конфигурации, которая была обойдена вниманием исследователей. Речь пойдет о модели полубесконечного слоя, когда горизонтальный и вертикальный размеры слоя жидкости велики по сравнению с характерными размерами задачи. В рассматриваемой ситуации можно выделить два таких размера. Первый из них - это размер источника неоднородности (источник тепла или массы), расположенного на поверхности и генерирующего течение Марангони. Однако, сравнения с одним лишь размером источника не достаточно. В рассмотренных выше исследованиях размер центрального нагревателя

иногда оказывался на порядок меньше горизонтального размера слоя. Гораздо более важным в рассматриваемой модели представляется сравнение размеров слоя с характерным размером генерируемого конвективного течения. Формально, скорость течения нигде не обращается в нуль, распространяясь на все предоставленное пространство жидкости. Тем не менее, наличие вязкого и теплопроводного диссипативных механизмов приводит к затуханию движения жидкости как в горизонтальном, так и вертикальном направлениях. В таком случае, можно выбрать в качестве характерного размера расстояние, на котором скорость конвективного течения убывает, например, в десять раз. Тогда наиболее интенсивная часть течения будет существовать вдали от внешних границ, дна и боковых стенок, кюветы. Именно такую конфигурацию будем далее называть моделью полубесконечного слоя.

В рамках такой модели можно пренебречь взаимодействием конвективного течения со стенками кюветы, сохранив устойчивость основного состояния до существенно больших значений чисел Марангони, что было бы невозможно в рассмотренных выше конфигурациях. Это позволяет исследовать устойчивость течения Марангони по отношению к механизмам, никак не связанным с влиянием границ полости. В Главе 1 рассмотрена проблема влияния типа источника тепла, непроницаемый источник с твердыми границами или проницаемый источник, индуцированный излучением, на структуру и устойчивость термокапиллярного течения Марангони. Показано, что в случае непроницаемого источника наличие твердой границы приводит к развитию неустойчивости в виде поверхностных волн, предсказанных ранее в теоретическом исследовании и не наблюдавшихся экспериментально. В случае проницаемого источника термокапиллярное течение остается устойчивым при любых значениях числа Марангони, достижимых в эксперименте. В Главе 2 задача о структуре и устойчивости течения Марангони в модели полубесконечного слоя рассмотрена на примере концентрационно-капиллярного течения, индуцируемого затопленным источником массы. Показано, что устойчивость течения определяется величиной динамического числа Бонда. При больших значениях данного параметра основное течение оказывается абсолютно неустойчивым по отно-

шению к колебательной моде, тогда как в области малых значений динамического числа Бонда, как и в термокапиллярной случае, наблюдается стационарное конвективное течение, устойчивое при любых значениях числа Марангони, достижимых в эксперименте. В Главе 3 исследуется взаимодействие конвективного течения Марангони с адсорбированным слоем молекул сурфактанта. Обнаружен неисследованный ранее тип неустойчивости, связанный с асимметрией граничного условия на свободной поверхности для вихревой и дивергентной составляющих конвективного течения.

1.1. Экспериментальная установка и методики измерений.

Эксперименты были проведены в кювете квадратного сечения, схематически изображенной на Рис.1.1а. На основание 1, выполненное из текстолита, наклеена прозрачная стеклянная рамка 2 высотой 11.0 см, задающая внутренние горизонтальные размеры полости $10.0 \times 10.0 \text{ см}^2$. Внутрь кюветы заливался слой жидкости высотой 10.0 см. В качестве рабочей жидкости использовался н-декан ($C_{10}H_{22}$), являющийся членом гомологического ряда предельных углеводородов (алканов). Выбор данной жидкости обусловлен двумя факторами. Во-первых, н-декан обладает сравнительно низким поверхностным натяжением, что значительно снижает вероятность того, что среди случайных примесей, попадающих в жидкость из деталей установки или окружающей среды, окажется вещество с большей поверхностной активностью, способное формировать поверхностную субфазу. Наличие такой субфазы существенно меняет условия как формирования течения Марангони, так и его устойчивость, что будет более подробно рассмотрено в Главе 3. Во-вторых, относительно низкое давление насыщенного пара н-декана позволяет минимизировать влияние осложняющих факторов, связанных с испарением базовой жидкости.

В центре полости под поверхностью жидкости был расположен источник тепла 3, размер которого мал по сравнению с размером свободной поверхности, что позволяло рассматривать проблему в приближении локализованного источника. Задача была исследована для двух различных типов источника тепла: твердотельный источник, образованный нагревательным

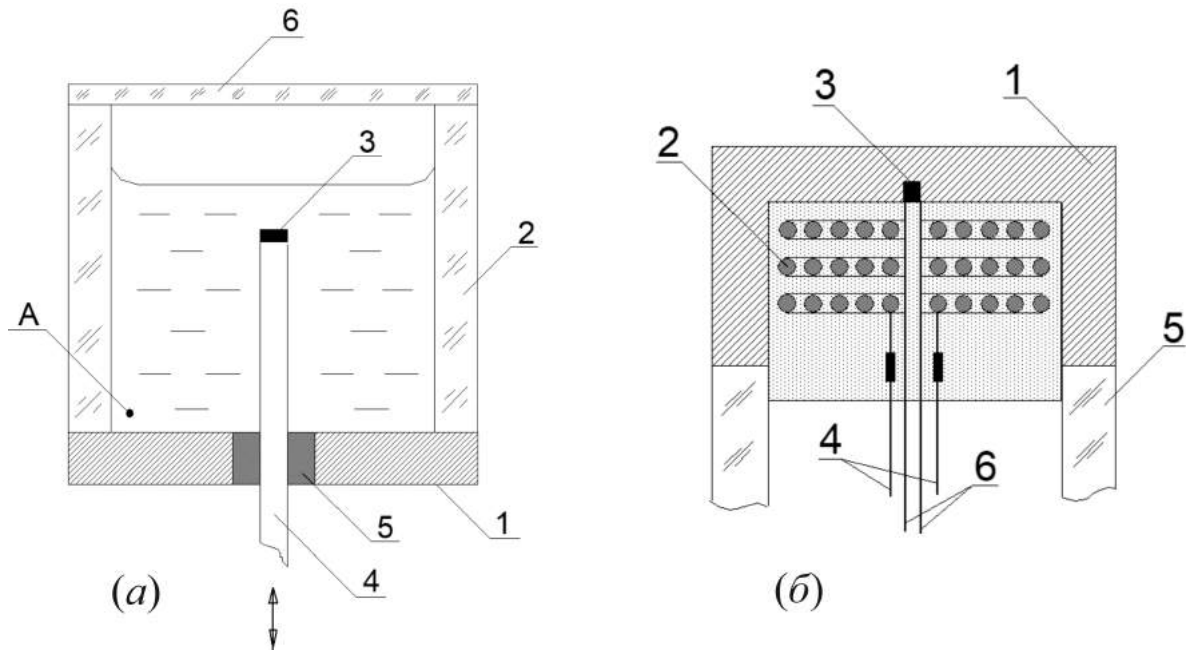


Рис. 1.1. (а) схема экспериментальной установки в случае твердотельного источника тепла. Цифрами обозначены: (1) – текстолитовое основание, (2) – стеклянная рамка, (3) – источник тепла, (4) – стеклянная трубка, (5) – фторопластовый сальник, (6) – стеклянная крышка. Точка А показывает расположение спая термодпары. (б) схема нагревательного элемента. Цифрами обозначены: (1) – латунная оболочка, (2) – манганиновый провод, (3) – спай термодпары, (4) – медные подводящие провода от источника питания, (5) – стеклянная трубка, (6) – провода термодпары.

элементом, и источник, индуцированный выделением тепла в ограниченной области жидкости за счет поглощения излучения. Далее приведены особенности конструкции экспериментальной установки для каждого из использованных типов источника.

В первом из рассматриваемых случаев в качестве источника тепла использовался нагревательный элемент, схематически изображенный на Рис.1.1б. Оболочка 1 нагревательного элемента представляла собой латунный стаканчик цилиндрической формы высотой 0.2 см и толщиной стенок 0.07 см. В экспериментах использовались нагреватели с внешним диаметром 0.5 см и 0.7 см, что составляло $1/20$ и $1/15$ от характерного линейного размера поверхности, соответственно. В отверстие в центре “дна” впаян спай 3 дифференциальной медь-константановой термодпары, второй спай

которой был размещён в удалённой от нагревателя области жидкости (точка А на Рис.1.1а). Внутри оболочки нагревательного элемента расположен тонкий (0.1 мм) манганиновый провод 2, электрически изолированный от внешней оболочки. На выходе из нагревателя концы манганинового провода были припаяны к медным подводящим проводам 4 от источника питания. Электрическое сопротивление манганинового провода для нагревательных элементов диаметром 0.5 см и 0.7 см равнялось 26 Ом и 30 Ом, соответственно. Электрическое сопротивление подводящих проводов в обоих случаях составляло $r = 2$ Ом. Нагревательный элемент был приклеен к стеклянной трубке 5 (позиция 4 на Рис.1.1а), имеющей одинаковый с оболочкой диаметр. Внутри трубки располагались подводящие провода 4 от стабилизированного источника постоянного тока и провода 6 термопары. Противоположный конец трубки был выведен за пределы полости через отверстие в основании и прикреплен к микрометрической подвижке (точность позиционирования 0.01 см), с помощью которой осуществлялось перемещение нагревательного элемента в вертикальном направлении. Во избежание вытекания жидкости из конвективной полости отверстие в основании герметизировано с помощью фторопластового сальника 5 (Рис.1.1а). В эксперименте задавалась постоянная мощность источника, вычисляемая, как полная электрическая мощность, затрачиваемая источником, за вычетом мощности, выделяемой на подводящих проводах $Q = IU - I^2r$, где I и U - измеряемые значения силы тока и разности напряжений. Мощность источника варьировалась в пределах (0 – 2) Вт.

Способ создания источника тепла, индуцированного излучением, схематически изображен на Рис.1.2. Источник света ИС, в качестве которого использовалась лампа накаливания с нитью круглой формы, помещался в фокальной плоскости собирающей линзы Л1. Затем пучок света проходил через инфракрасный светофильтр ИКС-7 (полоса пропускания 1 – 3 мкм, ближний ИК диапазон) и при помощи поворотного зеркала ПЗ направлялся на собирающую линзу Л2. Образовавшийся сходящийся световой поток направлялся на поверхность жидкости. Плотность светового потока распределена в пространстве неравномерно, принимая максимальные значения в окрестности точки S – центре изображения нити накаливания лам-

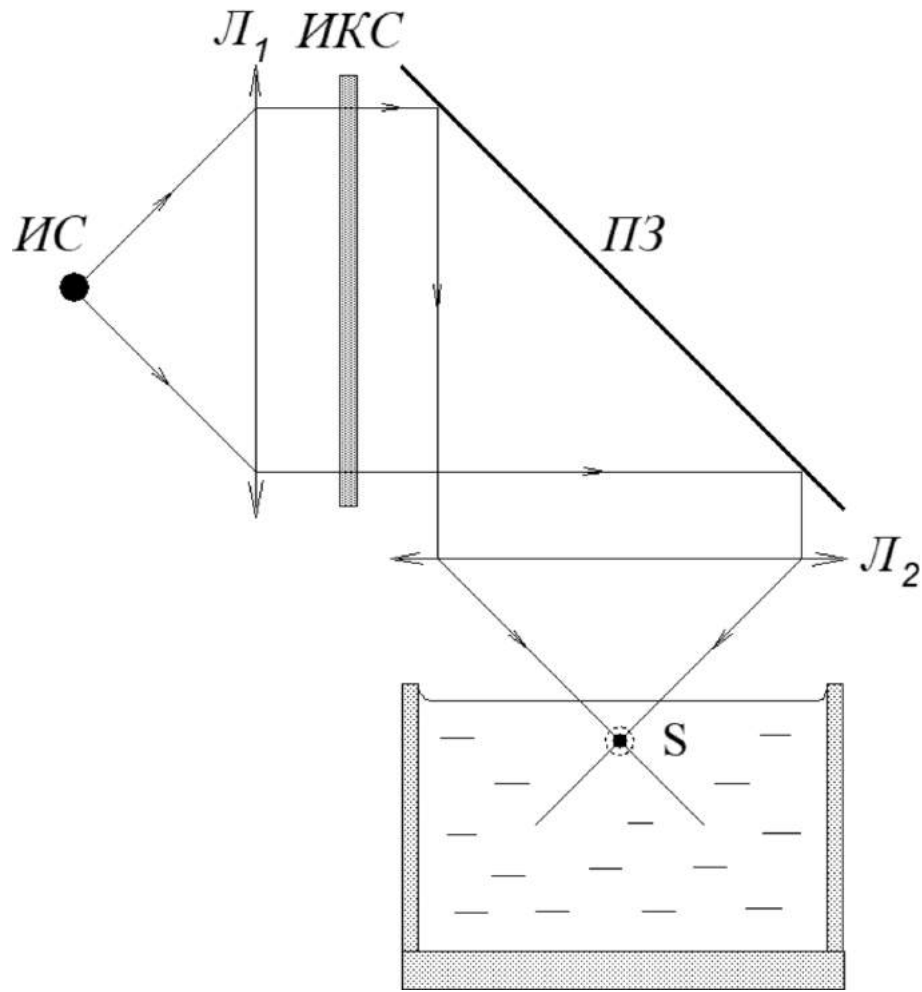


Рис. 1.2. Схема экспериментальной установки в случае источника тепла, индуцируемого излучением. Обозначения на схеме: *ИС* – источник света, *Л₁* и *Л₂* – линзы, *ИКС* – инфракрасный светофильтр, *ПЗ* – поворотное зеркало.

пы. Поскольку в каждом элементе жидкости, находящемся на пути излучения, выделяется тепло, пропорциональное поглощённой энергии, максимум тепловыделения в жидкости будет локализован также в области точки *S*, представляя собой сосредоточенный источник тепла. Размеры полученного таким способом источника будут тем меньше, чем больше телесный угол при вершине получившегося светового конуса. Параметры линзы *Л₂* были подобраны таким образом, что величина угла составляла $\sim 60^\circ$. Интегральный коэффициент поглощения для используемого ИК диапазона у н-декана составляет $\alpha = 0.06 \text{ мм}^{-1}$. Это означает, что на глубине около 20 мм интенсивность светового потока составляет 30% от интенсивности падающего излучения, что задает максимальную глубину погружения та-

кого источника.

Предварительно были проведены измерения распределения плотности светового потока вблизи точки S для определения характерных размеров источника тепла. С этой целью на пути светового пучка помещался кусочек медной фольги площадью 1 мм^2 , с одной стороны покрытый сажей. К противоположной стороне был припаян спай медь-константановой термопары. Второй спай располагался в термостате. Получившийся тепловой зонд помещался в воздухе на пути распространения лучей, зачернённой стороной навстречу световому потоку. Трёхкоординатная микрометрическая подвижка позволяла перемещать зонд в поперечном и продольном направлениях относительно пучка света. Измеряемая термопарой разность температур пропорциональна плотности светового потока, падающего на поверхность медной пластинки. На Рис.1.3а и 1.3б представлены зависимости приведенной температуры зонда от его положения относительно светового пучка. Видно, что на расстоянии $\sim 51 \text{ мм}$ от оптического центра линзы (см. Рис.1.3а) плотность светового потока достигает максимума. Это положение считалось центром получившегося источника тепла. В качестве границ теплового источника выбрана координата, в которой плотность светового потока составляет 30% от максимальной. При таком выборе, геометрические размеры источника тепла получились следующие: ширина - $\Delta y \approx 11 \text{ мм}$, высота - $\Delta x \approx 9 \text{ мм}$.

Предварительно были проведены измерения мощности получившегося источника тепла. Для этой цели был применён сравнительный калориметрический метод, суть которого состоит в следующем. Источник тепла известной мощности помещался в теплоизолированный сосуд с жидкостью, и измерялось изменение ее температуры со временем при нескольких фиксированных мощностях источника. Полученная таким образом зависимость скорости нагрева жидкости от мощности источника использовалась в качестве градуировочной кривой. На втором этапе в этот же сосуд помещался источник тепла, мощность которого необходимо определить. Затем решалась обратная задача: по измеренному темпу нагрева жидкости, используя ранее полученную градуировочную зависимость, определялась мощность источника тепла. В качестве эталонного был использован

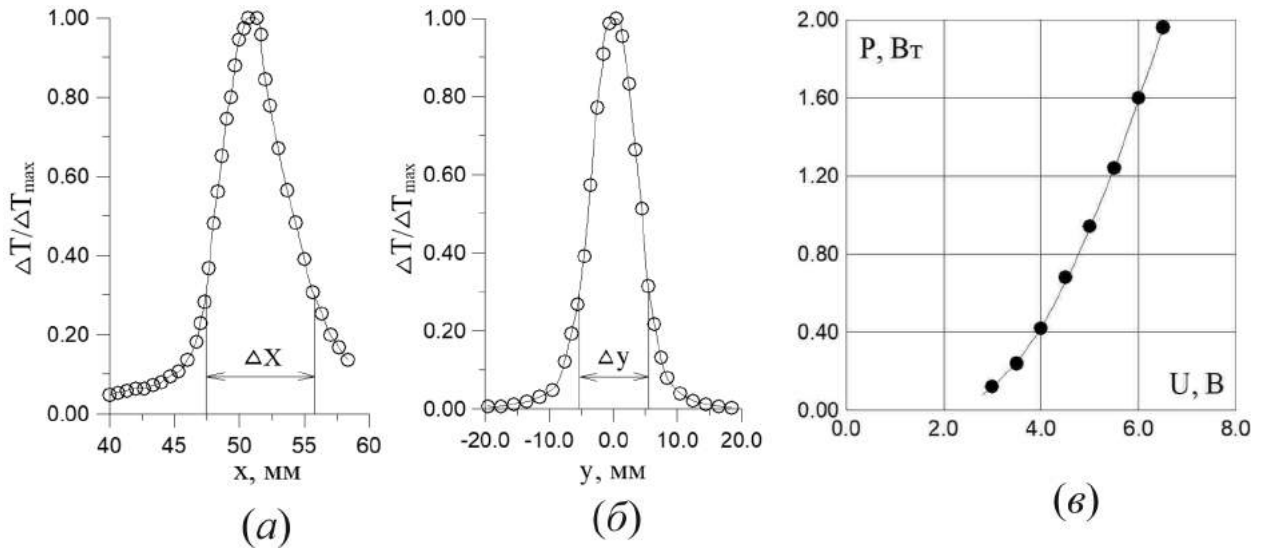


Рис. 1.3. Зависимость приведенной температуры зонда от его положения вдоль (а) продольной и (б) поперечной к оптической оси координатам. (в) - зависимость мощности светового источника тепла от напряжения, подаваемого на лампу накаливания.

описанный выше твердотельный источник тепла. Оба источника устанавливались на одинаковое, относительно поверхности жидкости, расстояние 10 мм. Температура жидкости измерялась медь-константановой термопарой, один из спаев которой припаян к тонкой медной фольге площадью 1 см^2 . Второй спай располагался в термостате. Для равномерного прогрева всего объёма жидкости в конструкции калориметрического сосуда было предусмотрено перемешивающее устройство. На Рис.1.3в приведена зависимость измеренной мощности светового источника тепла от напряжения, подаваемого на лампу накаливания от стабилизированного источника питания постоянного тока. Видно, что в диапазоне рабочих напряжений лампы мощность источника тепла может меняться в пределах (0 – 2) Вт. Таким образом, получившийся источник тепла, индуцированный излучением, по своим характеристикам, размерам и мощности, близок к твердотельному источнику тепла, описанному выше.

Для визуализации структуры конвективного течения и локальных измерений скорости в жидкость добавлялось небольшое количество светорассеивающих частиц и применялось освещение в форме светового ножа. В качестве частиц была использована алюминиевая пудра. Частицы

проходили многоэтапную очистку и предварительно сепарировались методом гравитационного осаждения в покоящейся жидкости с целью отделения мелкодисперсной фракции. Это позволило добиться равномерного по высоте распределения пудры за время проведения одного эксперимента, максимальная длительность которого составляла 30 минут. Профили скорости восстанавливались в процессе анализа движения отдельных частиц в покадровом режиме просмотра видеозаписи.

Для изучения деформации свободной поверхности жидкости, обусловленной возникновением конвективного движения, был применен оригинальный оптический метод, названный автором методом сканирующей щели. Суть метода проиллюстрирована на Рис.1.4а. Свет от лазера с помощью короткофокусной линзы $L1$, находящейся в фокусе коллиматорной линзы $L2$, преобразовывался в плоскопараллельный пучок, из которого затем диафрагмой $D\phi$ в форме щели вырезался узкий, протяженный фрагмент. Отраженный от поверхности жидкости световой пучок направлялся с помощью полупрозрачного зеркала на матовое стекло, выполнявшее роль экрана. Если поверхность жидкости деформирована течением, то изображение щели на экране будет искажённым. По виду отклонений от начальной формы можно восстановить профиль поверхности жидкости. Изображение щели на экране даёт информацию о форме той части поверхности, от которой непосредственно произошло отражение. Если при этом длина щели равна размерам поверхности жидкости в конвективной камере, то можно восстановить профиль некоторого среза всей поверхности. Переместив диафрагму в поперечном к щели направлении, получим профиль соседнего среза поверхности и т.д. Просканировав по всей ширине кюветы, можно восстановить форму поверхности жидкости. Для успешного применения данного метода важно, чтобы неоднородность формы поверхности была локальной, т.е. чтобы имелись области, где поверхность сохранила первоначально плоскую форму.

На Рис.1.4б представлена схема, демонстрирующая количественный метод восстановления профиля поверхности жидкости. Пусть в точке A поверхность неискажённая. Переместим щель, которая перпендикулярна плоскости рисунка на некоторое расстояние $BC = \Delta x_1$. Отражённая в

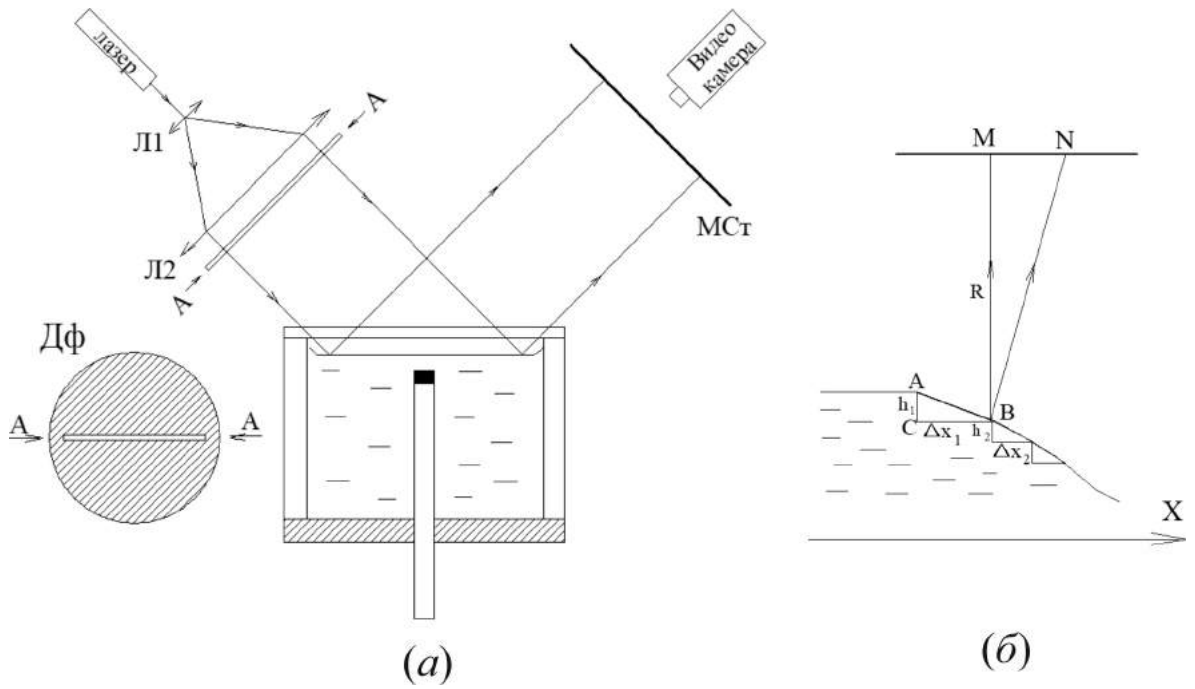


Рис. 1.4. (а) – схема метода сканирующей щели. (б) – схема восстановления профиля поверхности жидкости.

точке C часть световой щели даст изображение на экране в точке M . Восстановив изображение щели по тем ее частям, которые отразились от невозмущённой поверхности, получим положение точки M , в которую бы пришёл свет в отсутствие искажения формы поверхности. Учитывая, что $MN \equiv \delta_1 \ll R$ (R - расстояние от поверхности до экрана), можно найти глубину точки B относительно точки A по следующей формуле:

$$h_1 = \frac{\Delta x_1 \delta_1}{2R}.$$

Передвигая пошагово щель в поперечном направлении на расстояния Δx_i , и измеряя при этом смещение луча δ_i в каждой точке, можем вычислить глубину любой части поверхности относительно невозмущённой части границы раздела:

$$H = \sum_i h_i = \frac{1}{2R} \sum_i \Delta x_i \delta_i.$$

Расстояние между двумя соседними измерениями выбиралось так, чтобы наиболее точно аппроксимировать элемент поверхности прямой. Изменение расстояния от поверхности до экрана позволяли менять чувствительность

метода. Максимально возможные расстояния выбирались так, чтобы дифракционные искажения не мешали восстановлению изображения щели. Максимально достижимая чувствительность метода при таких ограничениях составляла ~ 0.1 мкм.

Описанный выше метод хорошо применим для измерений стационарной формы поверхности. Если же на поверхности жидкости возникают волны, то информативность метода падает, так как при этом можно узнать лишь какой-то срез волны без возможности восстановить полную картину в один и тот же момент времени. В таких случаях применялся другой метод, отличие оптической схемы которого состоит лишь в отсутствии диафрагмы. Вся площадь поверхности при этом освещается широким плоскопараллельным пучком света. От вогнутой части волны на поверхности жидкости свет отразится как от собирающего зеркала, что приведёт к усилению интенсивности падающего света в данном месте экрана. Наоборот, напротив выпуклой части волны интенсивность света, падающего на экран, будет меньше. Форма распределения интенсивности света на экране повторит при этом форму волны на поверхности жидкости. Необходимо подобрать расстояние до экрана, соответствующее наибольшей контрастности картины. Данный метод не может быть использован для количественного измерения профиля поверхности и применялся лишь для визуализации поверхностных волн.

1.2. Результаты экспериментов.

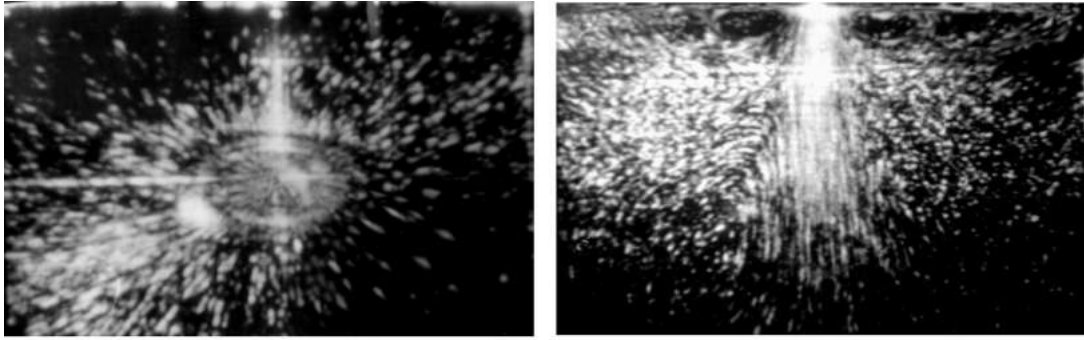
1.2.1. Структура конвективного течения.

Наблюдения показали, что для обоих типов источника тепла конвективное течение остается осесимметричным при любых значениях мощности нагревателя и глубине его погружения. Данный факт контрастирует с результатами исследования устойчивости термокапиллярного течения в задачах с цилиндрической геометрией: кольцевой плоский слой и цилиндрическая ячейка, обзор которых представлен во введении к данной главе. Таким образом, увеличение линейных размеров полости, моделирующее ситуацию полубесконечного слоя жидкости, приводит к стабилизации ос-

нового осесимметричного конвективного течения.

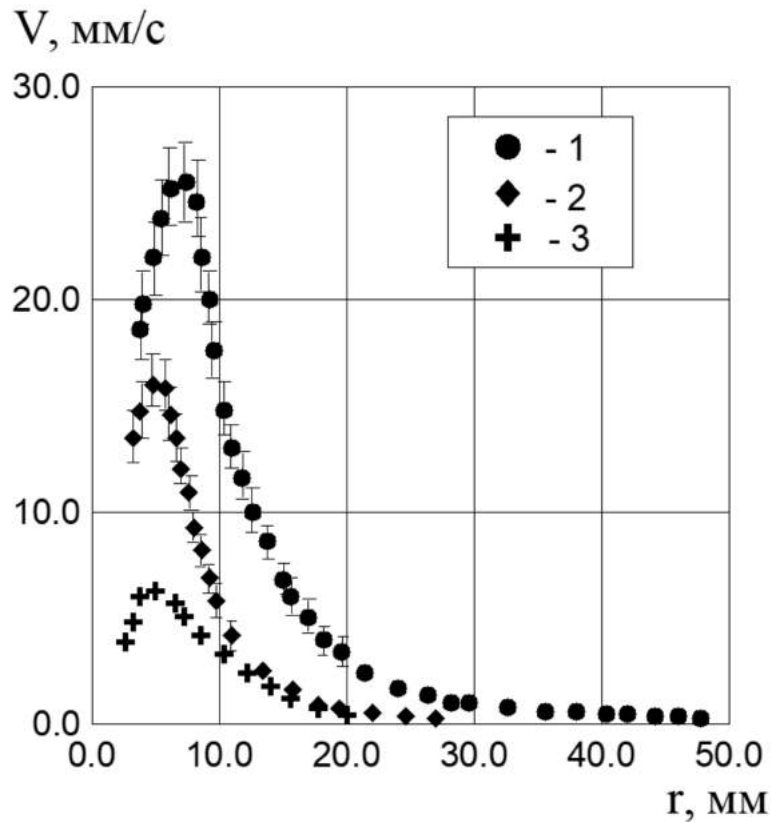
Несмотря на общее для использованных типов источника тепла сохранение осевой симметрии структура течения в рассматриваемых случаях отличается. В частности, обнаружены существенные различия в изменении скорости движения жидкости в радиальном и аксиальном направлениях. На Рис.1.5а приведено изображение структуры течения, генерируемого ИК источником тепла. Видно, что течение на поверхности имеет только радиальную составляющую и существует до границ полости. Светлое пятно в центре не связано с особенностями структуры течения, а является изображением источника благодаря чувствительности матрицы видеокамеры в ближнем ИК диапазоне. Зависимость скорости термокапиллярного течения на поверхности от радиальной координаты для трех различных положений источника тепла относительно границы раздела представлена на Рис.1.5б. Видно, что вблизи источника скорость быстро возрастает, достигая максимума, а затем постепенно убывает до края кюветы по закону $v_r \sim r^{-2}$. По мере приближения источника к поверхности или увеличения его мощности максимальное значение скорости увеличивается, а само положение максимума сдвигается к периферии кюветы, что говорит об увеличении вклада термокапиллярной конвекции при уменьшении глубины погружения источника. В отличие от центробежного течения, сосредоточенного в узкой приповерхностной области, возвратное течение равномерно распространяется на всю глубину слоя жидкости (Рис.1.5в). Характерной чертой такого течения является центральный подъёмный вертикальный поток, распространяющийся от самого дна к поверхности жидкости вблизи оси симметрии течения.

В случае твердотельного источника тепла распределение скорости как на поверхности, так и в объеме существенно отличаются от описанных выше. На Рис.1.6а и Рис.1.6б приведены изображения структуры течения, наблюдаемого на поверхности и в центральной вертикальной плоскости. Видно, что, в отличие от случая ИК источника, течение локализовано в пространстве и представляет собой торообразную конвективную ячейку, симметричную относительно вертикальной оси, проходящей через источник тепла. Ячейка ограничена в пространстве и имеет отчётливо замет-



(a)

(б)



(б)

Рис. 1.5. Трековые фотографии, иллюстрирующие структуру течения (a) на поверхности и (б) в вертикальной плоскости, проходящей через источник тепла. (б) – зависимость радиальной скорости на поверхности от радиальной координаты для различной глубины погружения источника тепла h мм: (1) – 0, (2) – 5.0, (3) – 10.0. Мощность источника тепла 0.6 Вт.

ные размеры, внутри которых сконцентрировано всё течение. За пределами конвективной ячейки жидкость неподвижна, о чём можно судить по отсутствию треков. Данный вывод подтверждается и измерениями профиля скорости в радиальном направлении. На Рис.1.6в представлен график

зависимости скорости течения на поверхности от радиальной координаты для двух различных положений источника тепла относительно границы раздела при одинаковой мощности. Видно, что на некотором расстоянии от источника тепла скорость становится равной нулю. Размер конвективной зоны и характерная величина скорости конвективного течения меняются при изменении мощности источника и его положения относительно границы раздела.

Очевидно, что изменения скорости конвективного движения и его распределения в пространстве отображают изменения вкладов термогравитационного и термокапиллярного механизмов генерации течения. Первый приводит к формированию теплового факела, поднимающегося от источника к поверхности. При относительно большой глубине нагревательного элемента диссипативные процессы успевают выровнять температуру всплывающей жидкости, вследствие чего течение на поверхности возникает лишь за счет вязкого увлечения границы раздела свободноконвективным движением. По мере приближения источника температура на поверхности повышается, что приводит к возникновению термокапиллярной конвекции. Интенсивность последней растет с уменьшением глубины погружения, достигая максимальной при расположении нагревательного элемента на свободной поверхности.

Для исследования относительного вклада каждого из механизмов были проведены дополнительные эксперименты, в которых измерялась температура оболочки нагревательного элемента (см. расположение спая термомпары на Рис.1.1б) для различных значений глубины погружения. При фиксированной мощности нагревателя температура источника зависит от коэффициента теплоотдачи в окружающую среду, величина которого определяется интенсивностью конвективного движения. Эксперименты проводились для двух случаев: открытой и закрытой поверхности жидкости. Во втором случае поверхность жидкости закрывалась тонкой стеклянной пластиной, что позволяло полностью исключить капиллярные эффекты.

На Рис.1.7 представлен график зависимости температуры оболочки нагревательного элемента от глубины погружения при различных значениях мощности. Для сравнения одновременно представлены результаты экс-

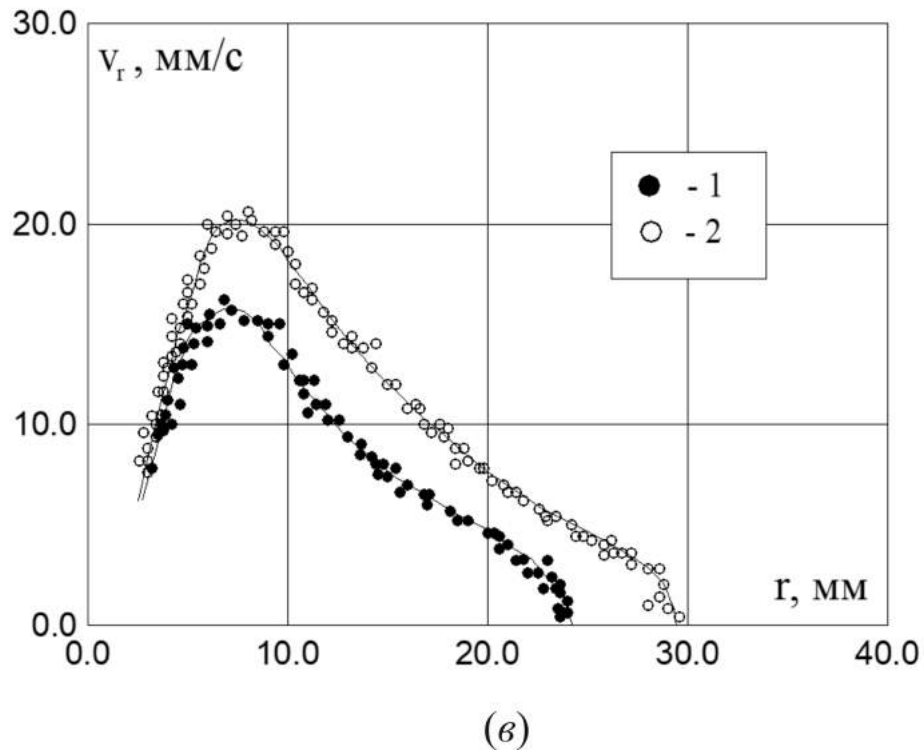
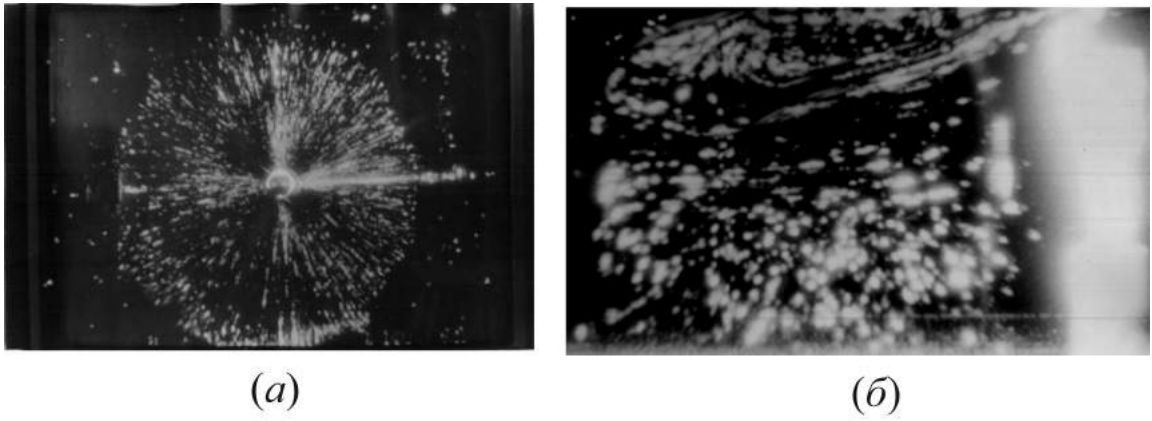


Рис. 1.6. Трековые фотографии, иллюстрирующие структуру течения (а) на поверхности и (б) в вертикальной плоскости, проходящей через источник тепла. (б) – зависимость радиальной скорости на поверхности от радиальной координаты для различной глубины погружения источника тепла h мм: (1) – 0, (2) – 10.0. Мощность источника тепла 0.61 Вт.

периментов с закрытой и открытой поверхностью жидкости. Видно, что при относительно большой глубине погружения температура оболочки источника тепла для обоих случаев практически не отличается. Однако, начиная с некоторого расстояния от источника тепла до поверхности жидкости, характер зависимости для открытой поверхности существенно отличается от случая закрытой поверхности. В последнем случае наблюдается

монотонное возрастание температуры оболочки нагревательного элемента по мере его приближения к верхней границе полости, что свидетельствует об уменьшении интенсивности термогравитационной конвекции, которая вместе с молекулярным механизмом теплопроводности отвечает за теплоотдачу от источника тепла. В случае свободной поверхности жидкости уменьшение глубины погружения приводит к заметному уменьшению температуры оболочки нагревательного элемента, т.е. к увеличению интенсивности общего конвективного течения, которое, в рассматриваемом случае, генерируется обоими, термогравитационным и термокапиллярным, механизмами.

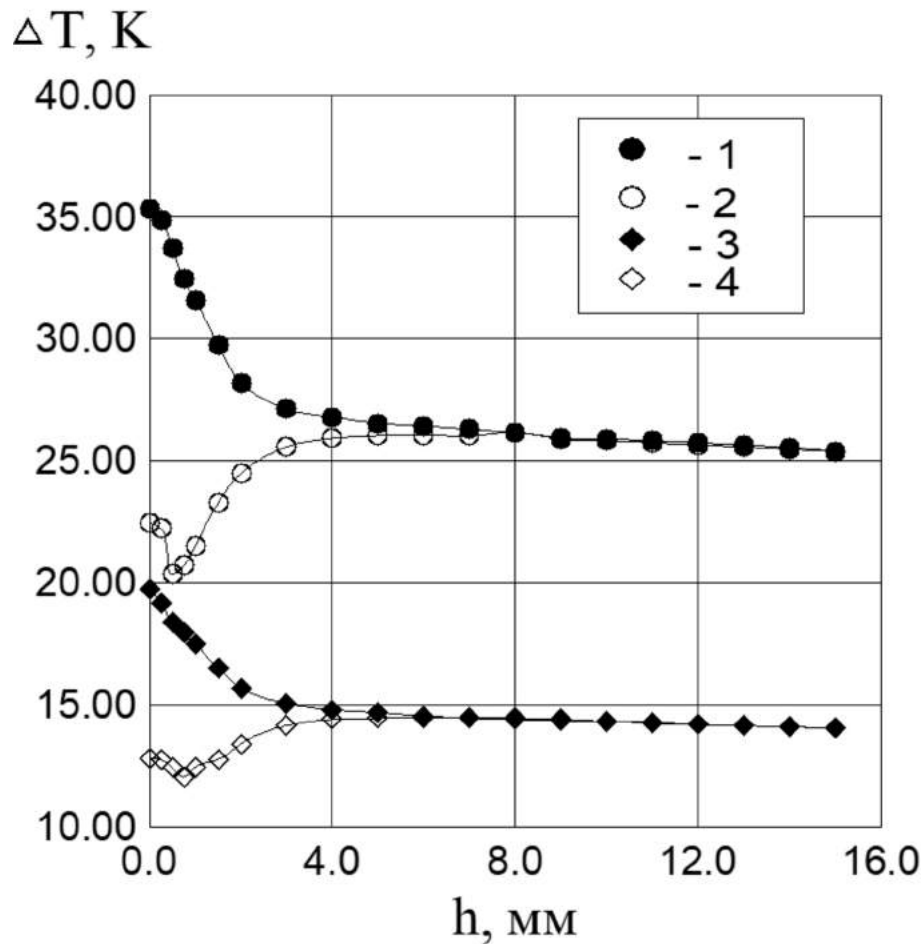


Рис. 1.7. Зависимость температуры оболочки нагревательного элемента от глубины погружения источника тепла. Диаметр источника 7 мм. Цифрами на графике обозначены зависимости для: (1) – закрытой поверхности, $P = 1.25$ Вт, (2) – открытой поверхности, $P = 1.25$ Вт, (3) – закрытой поверхности, $P = 0.61$ Вт, (4) – открытой поверхности $P = 0.61$ Вт.

Дальнейшее приближение источника тепла к открытой поверхности жидкости приводит к незначительному увеличению температуры источника тепла в области малых глубин. Это связано с появлением области контакта нагревателя с газовой фазой. Причем, как видно из графика, касание с поверхностью жидкости происходит при ненулевом значении глубины погружения. Это связано с искривлением формы поверхности жидкости над источником тепла в сторону жидкой фазы, что будет более подробно рассмотрено в следующем разделе. Теплоотдача при этом уменьшается пропорционально увеличению площади контакта оболочки нагревателя с газовой фазой, теплопроводность которой много меньше теплопроводности жидкой фазы.

Для количественной оценки относительного вклада термокапиллярного механизма можно ввести следующий безразмерный параметр $K = (T_{\text{зак}}/T_{\text{отк}}) - 1$, где $T_{\text{зак}}$ и $T_{\text{отк}}$ - температура оболочки нагревательного элемента в случае закрытой и открытой поверхности жидкости, соответственно. Эта величина является аналогом числа Нуссельта для данной задачи и имеет смысл отношения теплоотдачи за счёт термокапиллярного течения к сумме теплоотдач, обусловленных молекулярным переносом и свободно-конвективным движением, за вычетом единицы. На Рис.1.8 представлена такая зависимость для нагревательных элементов различного диаметра и мощности. Глубина погружения обезразмерена по диаметру источника тепла. Видно, что влияние термокапиллярных эффектов имеет место для расстояний до поверхности меньших или сравнимых с диаметром источника. Обобщенная экспериментальная зависимость хорошо описывается кривой $K \sim h^{-2}$, что не удивительно, учитывая, что динамическое число Бонда, равное отношению вкладов термогравитационного и термокапиллярного механизмов, также пропорционально квадрату расстояния до поверхности.

Интересно отметить, что подобная зависимость прослеживается и в изменении скоростных характеристик конвективного течения, генерируемого обоими источниками, от глубины их погружения. На Рис.1.9а приведена зависимость диаметра конвективной зоны для случая твердотельного источника тепла фиксированной мощности от расстояния до поверхности. Видно, что при глубине погружения, меньшей размеров источника, наблю-

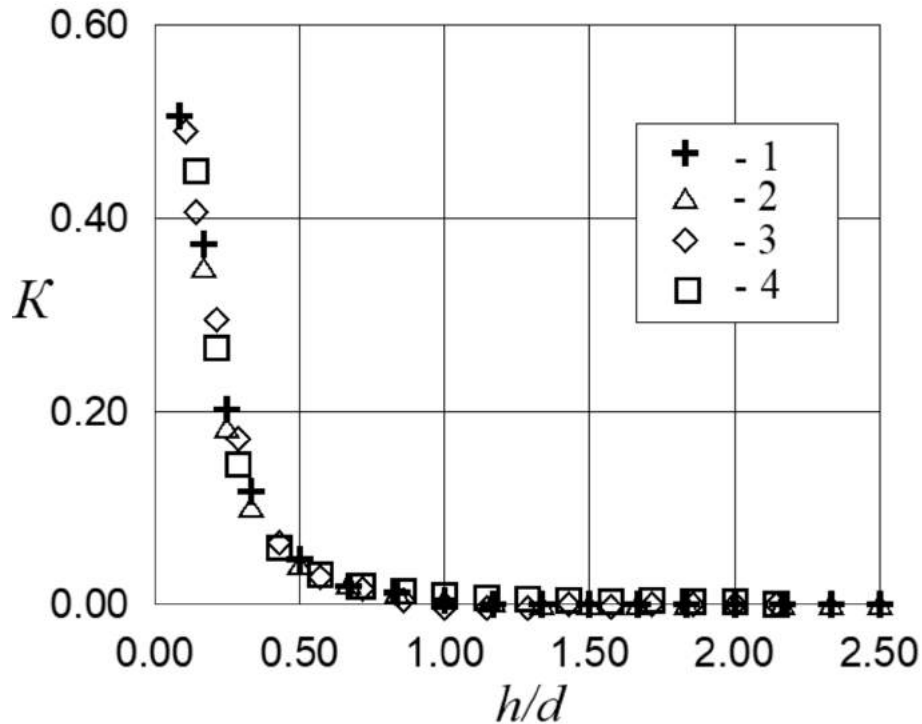


Рис. 1.8. Зависимость величины параметра K от безразмерной глубины погружения источника тепла. Цифрами на графике обозначены различные размеры и мощности источника тепла: (1) – $d = 5$ мм $P = 0.7$ Вт, (2) – $d = 5$ мм $P = 1.32$ Вт, (3) – $d = 7$ мм $P = 0.6$ Вт, (4) – $d = 7$ мм $P = 1.25$ Вт

дается увеличение размера области существования конвективного течения на поверхности, что, как было отмечено выше (Рис.1.8), связано с появлением термокапиллярного течения. В случае ИК источника в качестве «размера» конвективной зоны можно выбрать радиальную координату, на которой скорость течения достигает определенного значения. При таком выборе зависимость от глубины погружения источника также демонстрирует увеличение «размера» конвективной области при расстояниях, меньших размера самого источника (см. Рис.1.9б).

1.2.2. Влияние конвективного движения на форму свободной поверхности.

Наблюдения показали, что при любых значениях параметров задачи, мощности и глубине погружения источника тепла, граница жидкости вблизи источника всегда деформирована. Поверхность жидкости искривляется, принимая ту или иную форму в зависимости от характера и интенсивности

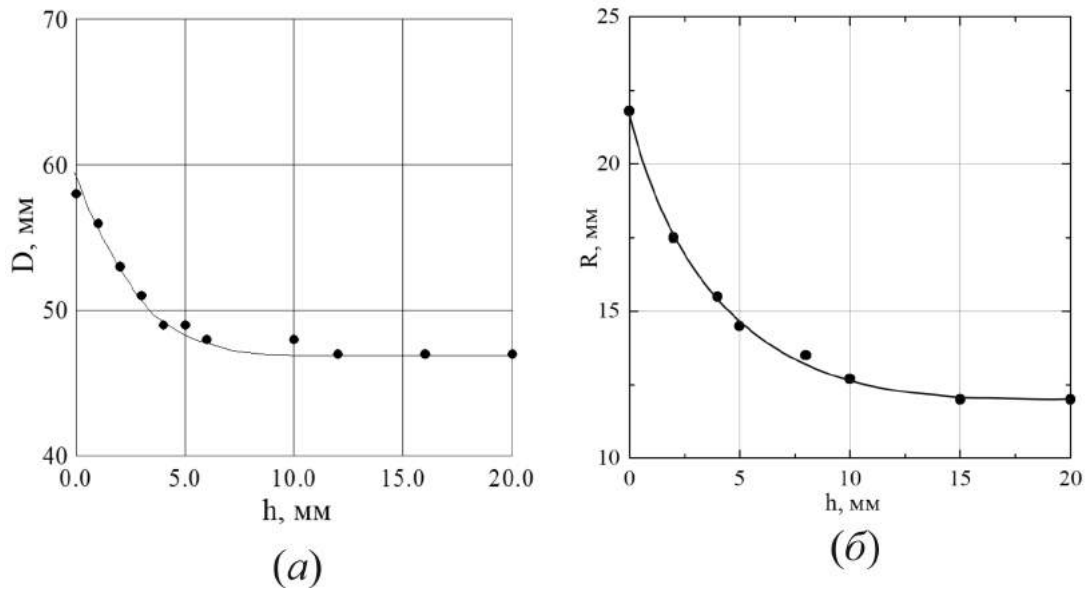


Рис. 1.9. Зависимость горизонтального размера конвективной зоны на поверхности жидкости для случаев (а) твердотельного и (б) ИК источников тепла.

возникающих в объёме жидкости течений. Форма поверхности и ее эволюция по мере изменения управляющих параметров существенно зависит от типа источника. Рассмотрим последовательно оба случая.

На Рис.1.1.10 представлены профили свободной поверхности в вертикальной плоскости, проходящей через центр источника, наблюдающиеся в случае ИК источника тепла. Для сравнения приведены профили, соответствующие трем положениям источника относительно границы раздела при фиксированной мощности. Видно, что кривизна всегда одного знака – поверхность выгнута в сторону газовой фазы. Амплитуда уменьшается по мере удаления источника от поверхности, и при глубине более 15 мм поверхность становится плоской. Отметим также, что профиль поверхности всегда остается осесимметричным и стационарным.

Совсем иная ситуация наблюдалась при использовании твердотельного источника тепла. На Рис.1.11а представлены профили свободной поверхности, полученные для трех положений нагревателя относительно границы раздела при фиксированной мощности. Пунктирной линией отмечено положение невозмущенной границы раздела. Видно, что при любом расположении источника профиль поверхности симметричен относительно вертикальной оси, проходящей через центр нагревательного элемента. Фигура

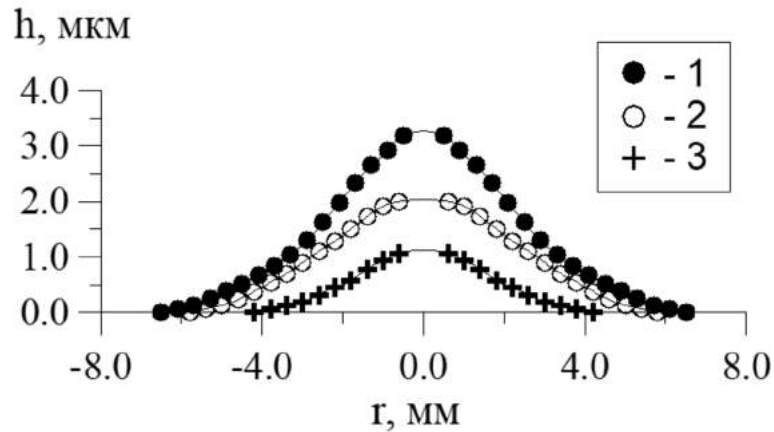
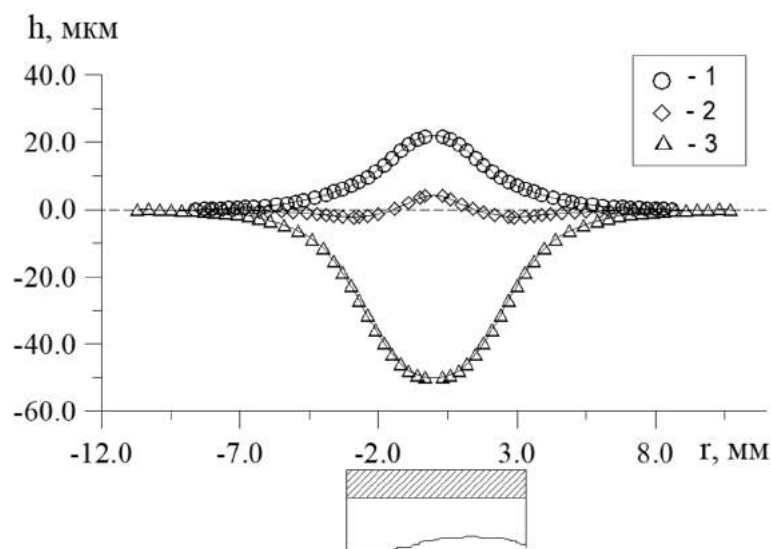


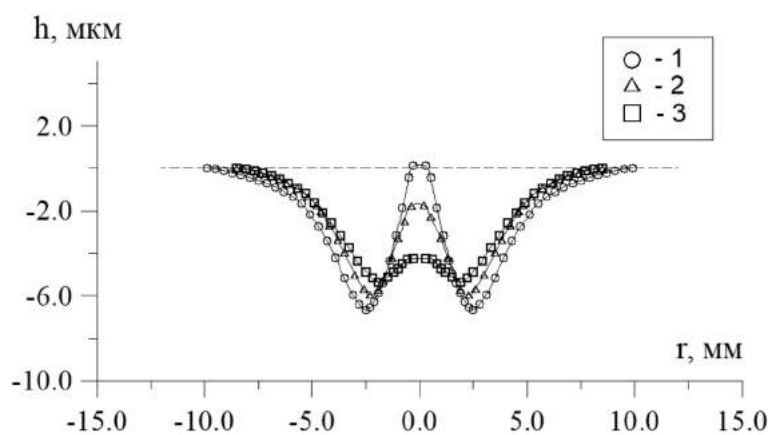
Рис. 1.10. Профиль поверхности жидкости при различных положениях ИК источника тепла h мм: (1) – 0, (2) – 5.0, (3) – 10.0. Мощность источника $P = 0.6$ Вт.

вращения, образованная профилем относительно этой оси даст трёхмерную форму поверхности жидкости. При относительно большой глубине погружения источника тепла, когда интенсивность термокапиллярного течения мала, определяющим механизмом конвекции является термогравитационный. При этом характерной чертой такого течения является наличие теплового факела, распространяющегося от источника тепла к поверхности жидкости и приводящего к искривлению поверхности в сторону газовой фазы (кривая 1 на Рис.1.11а). По мере приближения источника к поверхности жидкости начинает возрастать вклад термокапиллярного механизма конвекции в общую картину течения. Увеличивающаяся при этом интенсивность центробежного движения вдоль поверхности и уменьшение толщины слоя жидкости над нагревательным элементом приводят к смене знака кривизны профиля (кривая 3 на Рис.1.11а). При промежуточных значениях глубины погружения источника, когда интенсивность термокапиллярного и термогравитационного течения становятся сравнимы, на поверхности наблюдаются участки профиля с обоими знаками кривизны (кривая 2 на Рис.1.11а).

Вариации мощности источника при его фиксированном положении относительно границы раздела также приводят к изменению формы поверхности. Однако изменения профиля носят скорее количественный, чем качественный характер. На Рис.1.11б представлены профили поверхно-



(a)



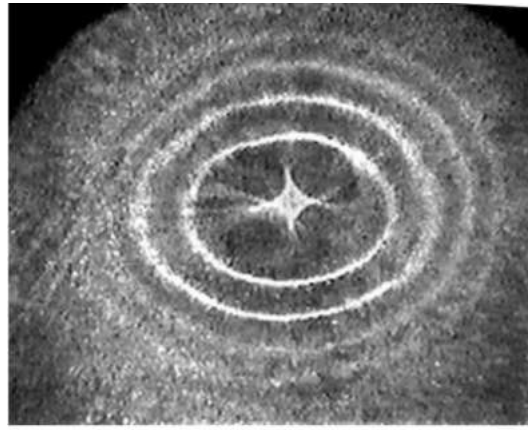
(б)

Рис. 1.11. (a) Профиль поверхности жидкости при различных положениях твердотельного источника тепла h , мм: (1) – 9.0, (2) – 2.3, (3) – 1.2. Мощность источника $P = 0.8$ Вт. (б) Профиль поверхности жидкости при различных мощностях твердотельного источника тепла P , Вт: (1) – 1.25, (2) – 0.80, (3) – 0.45. Глубина погружения источника $h = 2.0$ мм.

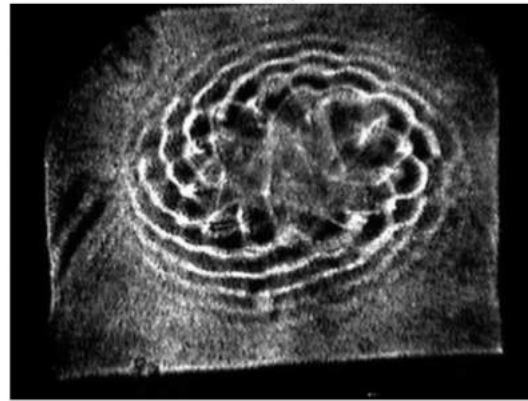
сти жидкости для трех различных мощностей нагревательного элемента для одной глубины погружения, соответствующей сопоставимым вкладам термогравитационного и термокапиллярного механизмов. Видно, что при неизменной форме поверхности меняется лишь амплитуда на участках с кривизной разного знака. Данное наблюдение подтверждает сделанный выше вывод о пропорциональном росте вкладов обоих механизмов при изменении мощности источника.

1.2.3. Генерация поверхностных волн вблизи твердотельного источника.

При небольших глубинах погружения твердотельного источника, соответствующих преобладающему вкладу термокапиллярного механизма конвективного течения, вогнутая форма свободной поверхности перестает быть стационарной. При этом кривизна поверхности жидкости над нагревателем меняется периодически со временем возле некоторого равновесного значения, что приводит к образованию поверхностных волн, распространяющихся от источника тепла. Конфигурация возникающих при этом волн зависит от расстояния до поверхности и мощности нагревателя. Первой при уменьшении глубины погружения или увеличении мощности на границе раздела пороговым образом возникает цилиндрическая волна. Пример такой волны показан на Рис.1.12а. При дальнейшем приближении источника к поверхности или увеличении его мощности цилиндрическая волна сменяется на спиральную (Рис.1.12б). Следует отметить, что вначале на поверхности всегда возникают две волны с одинаковым волновым числом, но с противоположным направлением вращения, в результате чего на границе раздела формируется стоячая волна (Рис.1.12б). Однако спустя некоторое время одна из волн затухает, и на поверхности остается только волна противоположного направления вращения. Вероятность формирования волн, вращающихся по или против часовой стрелки, одинакова. Дальнейшее уменьшение глубины погружения нагревателя или его мощности приводит к увеличению азимутального волнового числа, что проявляется в увеличении числа ветвей спиральной волны. В экспериментах были получены спиральные волны с числом ветвей от одного до десяти. На рис.1.13 представлены примеры спиральных волн с различным значением азимутального волнового числа. Дальнейшее приближение источника тепла приводит к касанию оболочки нагревательного элемента с поверхностью жидкости. Поскольку поверхность вогнутая, то это происходит при отличной от нуля глубине погружения. Колебания поверхности жидкости при этом прекращаются, и профиль поверхности снова становится стационарным.



(a)



(б)



(в)

Рис. 1.12. Поверхностные волны: (а) – цилиндрическая, (б) – стоячая спиральная, (в) – бегущая (против часовой стрелки на данном изображении) спиральная.

Значение глубины погружения, при котором форма поверхности жидкости становится нестационарной, и возникают поверхностные волны, зависит от мощности источника тепла. На Рис.1.14 представлена карта режимов в координатах мощность источника – глубина погружения, на которой

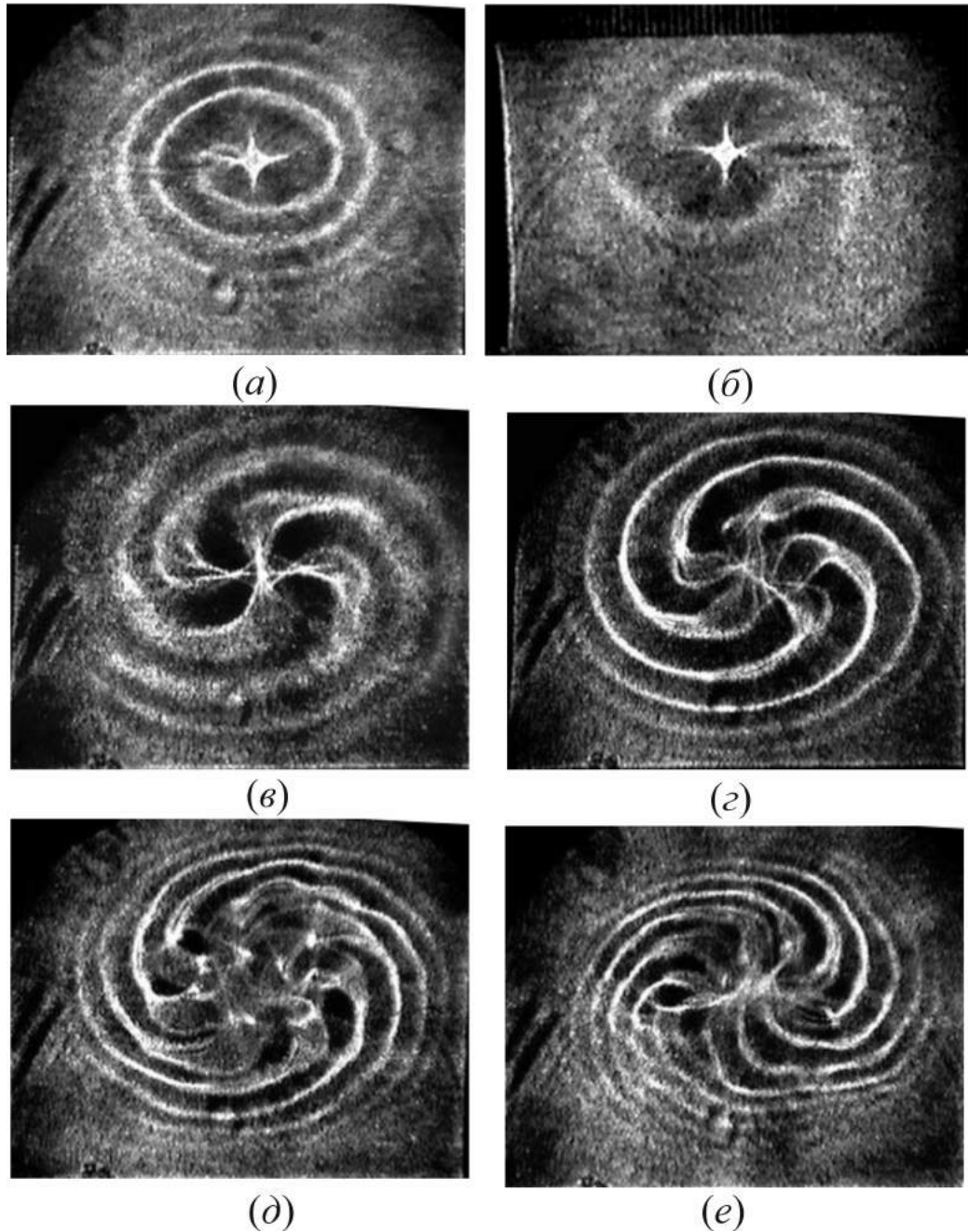


Рис. 1.13. Изображения поверхностных бегущих волн спиральной конфигурации с различным числом рукавов.

выделены области существования цилиндрической и спиральной волн, а также область касания нагревателя с газовой фазой. Видно, что при увеличении мощности источника тепла пороговое значение глубины погружения увеличивается.

На Рис.1.15 представлена пространственно-временная развертка для волн различной конфигурации, представляющая собой временную зависимость радиальной координаты точек волны с одинаковой фазой для некото-

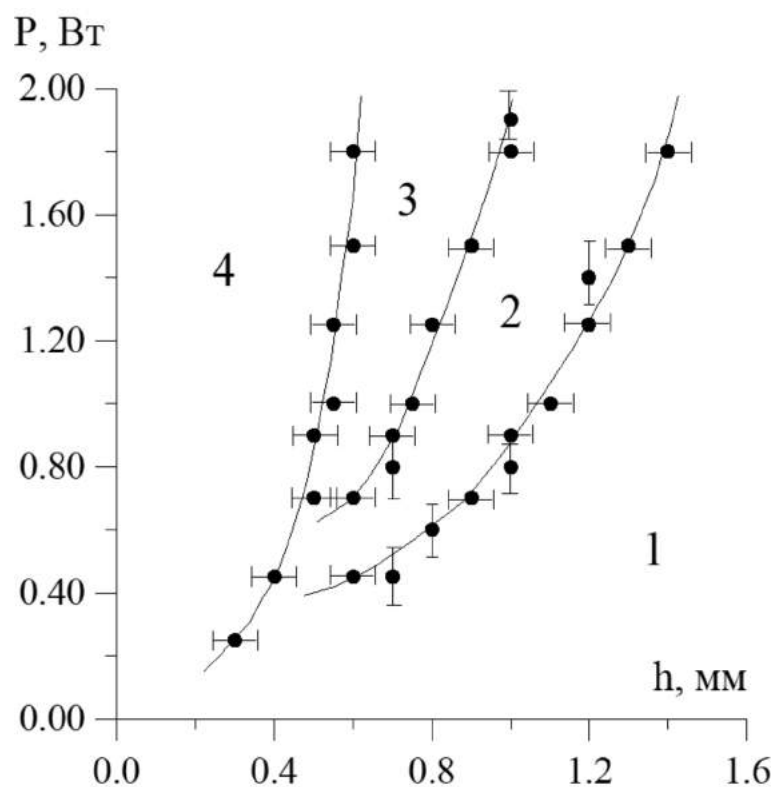


Рис. 1.14. Карта режимов поверхностных волн в координатах мощность источника – глубина погружения. Цифрами на карте обозначены области существования: (1) – стационарной формы поверхности, (2) – цилиндрической волны, (3) – спиральной волны, (4) – контакта нагревателя с газовой фазой.

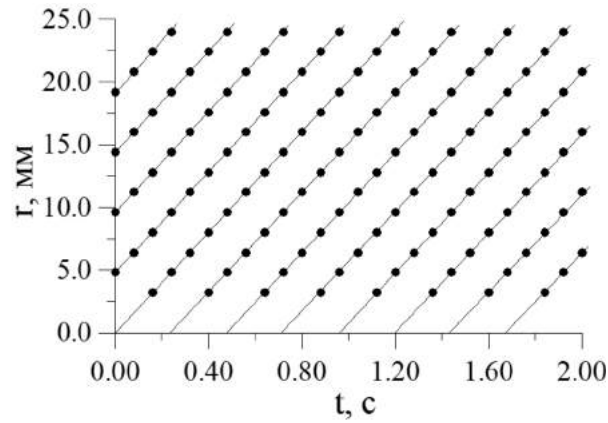
рой выбранной азимутальной координаты. Вертикальный и горизонтальный срезы такой зависимости дадут информацию о пространственной и временной частоте, а производная – скорость распространения волны в любой точке. Видно, что пространственно-временные характеристики цилиндрической и спиральной волн существенно отличаются. Например, для цилиндрических волн характерна постоянная радиальная скорость распространения волнового фронта и постоянное радиальное волновое число (Рис.1.15а). В случае спиральных волн зависимость становится нелинейной, что говорит о неравномерном распространении волны от источника (Рис.1.15б). Радиальная составляющая скорости волнового фронта убывает по мере распространения волны к периферии. При этом радиальное волновое число возрастет. Ещё более отчётливо эти эффекты проявляются при увеличении числа ветвей спирали (Рис.1.15в). Однако видна и об-

щая черта рассматриваемых волн. При достаточном удалении от центра пространственно-временные характеристики становятся одинаковыми: скорость и пространственная частота спиральных волн стремятся к величине, характерной для цилиндрической волны. На Рис.1.16 приведен график зависимости радиальной скорости волн различной конфигурации от расстояния от источника. Для сравнения представлена такая же зависимость для скорости течения на поверхности. Видно, что есть области, где волна обгоняет поток, и где наоборот отстаёт от него.

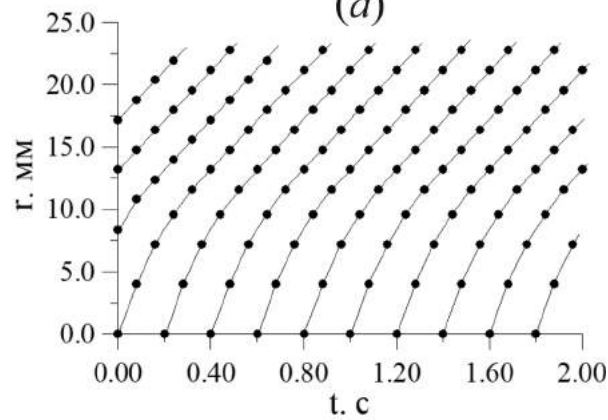
Изменение характеристик спиральной волны с радиальной координатой и их сходство с характеристиками цилиндрической волны на удалении от источника можно объяснить следующими соображениями. Анализ изображений спиральных волн, представленных на Рис.1.13, показывает, что, на момент зарождения, волны представляют собой суперпозицию волн с различной пространственной частотой. Особенно отчётливо это заметно для волн с $m > 3$: волновой фронт вначале распространения промодулирован коротковолновыми составляющими. Видно, что чем больше азимутальное волновое число, тем сложнее структура волнового фронта в области зарождения волны. Дисперсионные характеристики волн, составляющих такой «пакет», различные. Волны с более короткой длиной волны имеют, как правило, больший коэффициент затухания. Представляется, что в рассматриваемом случае, затухание отдельных частей волнового пакета приводит к изменению его характеристик. При этом остающаяся основная мода и определяет одинаковые пространственно-временные характеристики цилиндрических и спиральных волн на периферии.

1.3. Обсуждение результатов.

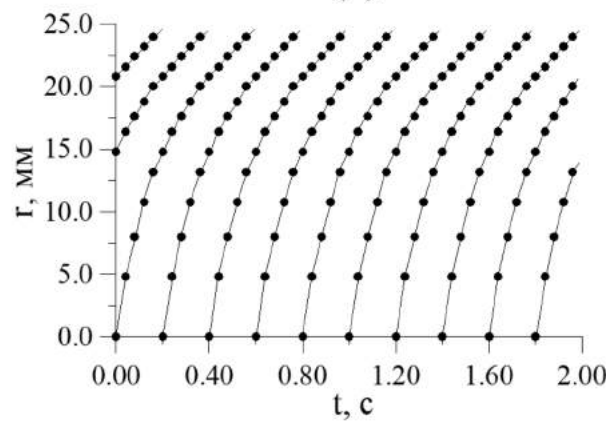
Анализ представленных результатов позволяет сделать вывод о том, что из всех известных задач о термокапиллярной конвекции от локализованного источника в цилиндрической, или коаксиальной, геометрии рассмотренная постановка, моделирующая ситуацию полубесконечного слоя жидкости, отличается наибольшим потенциалом устойчивости основного течения. Действительно, представленные во введении результаты исследо-



(a)



(б)



(в)

Рис. 1.15. Пространственно-временная развертка волнового движения: (а) – цилиндрическая волна, (б) – спиральная трех-рукавная волна, (в) – спиральная пяти-рукавная волна.

ваний для случаев кольцевого плоского слоя и цилиндрической ячейки показывают, что основное течение становится неустойчивым при достижении относительно небольших перепадов температуры вдоль поверхности. Это могут быть как стационарные, осесимметричные структуры, так и нестационарные, приводящие к потере осевой симметрии основным течением. В

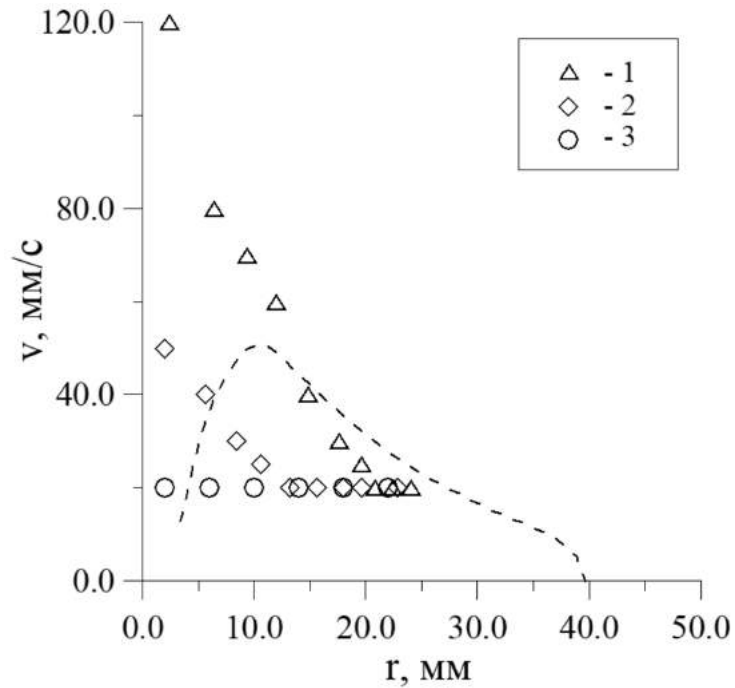


Рис. 1.16. Зависимость радиальной скорости поверхностной волны от радиальной координаты: (1) и (2) – спиральные волны с тремя и пятью рукавами, соответственно, (3) – цилиндрическая волна. Пунктирная линия – радиальная скорость конвективного течения на поверхности.

рассматриваемом же случае даже при максимально достижимых перепадах температуры, до 50 К, основное течение оставалось стационарным и симметричным. Увеличение линейных, как горизонтальных, так и вертикальных, размеров полости минимизирует появление участков конвективного течения с большими значениями градиента скорости, являющихся, как правило, источниками зарождения возмущений.

Следует отметить, что рассмотренные в данном разделе ситуации твердотельного и ИК источника не эквивалентны в плане устойчивости. В первом случае приближение нагревательного элемента к границе раздела приводит к появлению колебаний поверхности над источником, что вызывает формирование поверхностных волн. Анализ поля скорости за пределами источника (см. Рис.1.16) показывает, что эта область течения остается стационарной и осесимметричной даже в случае существования поверхностных волн. Возмущения зарождаются в слое над источником, приводя к формированию волн, и затем сносятся основным потоком, быстро затухая. Таким образом, неустойчивость оказывается локализованной в

небольшой области, не приводя к неустойчивости всего основного течения. В то же время течение, генерируемое ИК источником, существенно отличается в этом плане, оставаясь устойчивым как вблизи источника, так и в дальней области течения.

Различия в граничных условиях для течения на поверхности источника приводят также и к существенной разнице в структуре основного течения. При сохранении общей для обоих источников осевой симметрии течения имеются существенные различия в радиальном и аксиальном направлениях. В случае твердотельного источника область существования течения ограничена в пространстве, что достаточно непривычно для рассматриваемой геометрии. В то же время течение от ИК источника распространяется на весь объем жидкости. Объяснение данному факту представляется следующим. Когда вблизи поверхности находится проницаемый для течения ИК источник, жидкость в возвратном течении подтекает к нагретой области поверхности со всех направлений, т.е. в пределах телесного угла 2π . Иная ситуация наблюдается, когда термокапиллярное течение сформировано находящимся возле поверхности непроницаемым для течения источником конечных размеров. Телесный угол, в пределах которого теперь существует возвратное течение, значительно меньше. Возвратное течение оказывается как бы выдавленным в приповерхностные слои. При этом оно не успевает скомпенсировать центробежное течение, что приводит к замыканию внешней линии тока не на бесконечности (в нашем случае это боковые стенки конвективной камеры), а на конечных расстояниях от источника тепла (наблюдаемые границы конвективной ячейки). С невозможностью компенсировать центробежное течение связано и формирование вогнутого профиля поверхности над твердым источником тепла. Анализ публикаций исследований со сходной геометрией задачи [61–63] показывает, что во всех случаях, когда вблизи поверхности жидкости находится какая-либо твердая граница (в перечисленных работах это нижняя граница плоского слоя), профиль поверхности над источником всегда оказывается вогнутым в сторону жидкой фазы.

Отдельно следует обсудить причины неустойчивости, наблюдаемой в случае твердотельного источника. Очевидно, что поверхностные вол-

ны формируются в пространстве над источником. Данная область жидкости, учитывая соотношение ее горизонтального и вертикального размеров, представляет собой плоский горизонтальный слой жидкости со свободной верхней границей, вдоль которой, в радиальном направлении, задан градиент температуры. Как указывалось во введении к данной главе, для такой конфигурации поверхностные волны были предсказаны теоретически [30], как один из возможных сценариев неустойчивости, возникающей в результате взаимодействия деформируемой поверхности и сдвигового течения и имеющей чисто гидродинамическую природу. В статье [30] было показано, что в терминах числа Рейнолдса нейтральная кривая для возмущений в виде поверхностной волны в термокапиллярной задаче практически совпадает с нейтральной кривой, полученной этими же авторами для изотермического случая, когда к поверхности тонкого слоя жидкости приложено постоянное тангенциальное напряжение, обусловленное, например, движением газа вдоль границы раздела [64]. Таким образом, термокапиллярный механизм выполняет пассивную роль и необходим только для создания сдвигового течения, взаимодействие которого с деформациями поверхности и приводит к появлению поверхностных волн. В силу гидродинамической природы неустойчивости данный тип возмущений является наиболее опасным в области малых чисел Прандтля. В области значений числа Прандтля больше единицы, соответствующим жидкостям, применяемым, обычно, в гидродинамике, наиболее опасными являются гидродинамические волны, что было подтверждено в многочисленных экспериментах. Критические значения числа Марангони, соответствующие возникновению поверхностных волн, в рассматриваемом диапазоне чисел Прандтля лежат выше (см. Рис.12 в [30]). В экспериментах данный тип неустойчивости не наблюдался, вследствие чего считалось, что они просто не могут развиваться на фоне развитого течения в виде гидротермических волн. Иная точка зрения была высказана в серии работ Д. Швабе [45, 53, 54]. Авторы показали, что отсутствие наблюдений поверхностных волн в более ранних экспериментах обусловлено двумя причинами. Во-первых, методики визуализации не годились для наблюдения данного типа неустойчивости. Обычно, в экспериментах применялся теневой метод, оптическая схема которого предпола-

ет наблюдение неоднородностей в проходящем через слой жидкости пучке света. При такой схеме хорошо визуализируется структура гидротермических волн, распространяющихся в объеме. Деформации же поверхности практически не вносят вклад в регистрируемый сигнал. В некоторых исследованиях использовалась ИК видеокамера, что также не позволяет регистрировать поверхностные волны. Второй причиной являются различия между прямоугольной и коаксиальной геометрией. В первом случае наличие боковых, как правило, близко расположенных, границ демпфирует развитие волновых возмущений, таких как поверхностные волны, распространяющихся в поперечном градиенту температуры направлении. Д. Швабе предложил [54] применить схему теневого метода с наблюдением в пучке, отраженном от поверхности жидкости, что позволило обнаружить поверхностные волны в коаксиальной геометрии. Структуры были обнаружены в надкритической для гидротермических волн области чисел Марангони. Исследователи наблюдали вблизи горячего центрального теплообменника периодические возмущения поверхности с характерной амплитудой ~ 10 мкм, бегущие в азимутальном направлении. При этом гидротермические волны независимо существовали вблизи холодной внешней границы, не взаимодействуя с поверхностной модой. Увеличение надкритичности приводило к росту азимутального волнового числа поверхностной волны.

Представляется наиболее вероятным, что обнаруженные в представленных выше исследованиях структуры являются поверхностными волнами, предсказанными в теоретических исследованиях М. Смита и С. Дэвиса и обнаруженными ранее Д. Швабе в экспериментах в случае плоского коаксиального слоя. К сожалению, провести детальное количественное сравнение с результатами Смита и Дэвиса достаточно сложно в силу большого количества допущений и упрощений, сделанных в ходе проведения теоретического исследования. В статье [30] был проведен линейный анализ устойчивости, что позволяет получить только информацию о критическом значении числа Марангони и волновом числе наиболее опасных возмущений. Основная часть исследования относится к случаю бесконечного слоя жидкости, для которого наиболее опасными оказываются длинноволновые возмущения с нулевым волновым числом. Для конечных по размеру сло-

ев было проведено численное исследование для аспектного соотношения $A = d/L = 0.1$ (d и L – глубина и горизонтальный размер слоя жидкости) и для нескольких значений безразмерного параметра $S = d\rho\sigma\nu^{-2}$ (ρ , σ и ν – плотность, поверхностное натяжение и кинематическая вязкость жидкости), отвечающего за деформируемость жидкости. Представленные в статье результаты расчетов показывают (см. Рис.12 в [30]), что при $S = 10^4$ и $Pr = 15$, соответствующим рассматриваемому эксперименту, поверхностные волны должны возникать при числах Марангони $Ma_{теор} \approx 1500$. Оценка числа Марангони из экспериментальных данных для случая $A = 0.1$ показывает, что поверхностные волны появляются при $Ma_{эксн} \approx 1700$, что свидетельствует о хорошем согласии, учитывая существенные различия в постановке задачи в теоретическом и экспериментальном исследованиях. Сравнение волновых чисел также показывает неплохое согласие: $\alpha_{теор} = 0,3$, $\alpha_{эксн} = 0.45$, учитывая, что нейтральная кривая, полученная в теоретическом исследовании, очень пологая вблизи минимума, что предполагает близость критических значений числа Марангони для широкого диапазона значений волнового числа. Следует также заметить, что Смит и Дэвис рассмотрели устойчивость по отношению к двумерным волнам, считая их, в соответствии с теоремой Сквайра, наиболее опасными. В наших экспериментах первой, действительно, возникает двумерная цилиндрическая волна, и лишь при больших надкритичностях появляется трехмерная спиральная волна.

Гораздо больше возможностей появляется при сравнении с результатами экспериментов, проведенных группой Д. Швабе. На Рис.1.17 приведена зависимость критического числа Марангони от соотношения толщины и горизонтального размера слоя жидкости над нагревательным элементом. Число Марангони определено так же, как и в статьях [30, 54]. Кривые 1 и 2 соответствуют границе возникновения цилиндрических и спиральных волн, наблюдавшихся в настоящем исследовании. Для сравнения приведены данные из [30, 54]. Результаты, полученные в двух экспериментальных и теоретическом исследованиях, лежат в одном узком диапазоне критических чисел, что говорит о том, что во всех случаях объектом исследования является один и тот же тип неустойчивости – поверхностные волны. Об

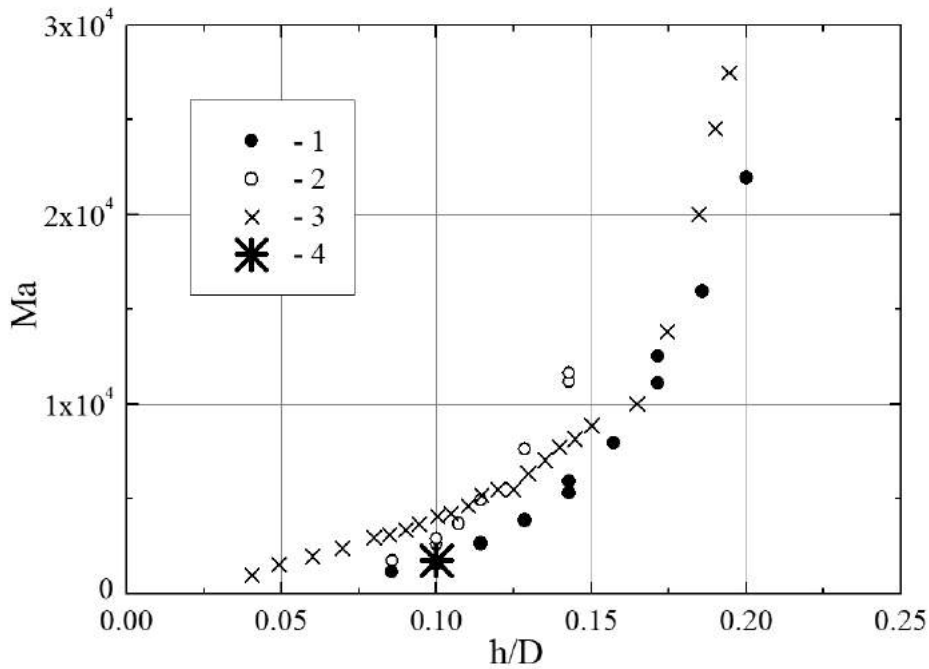


Рис. 1.17. Зависимость критического значения числа Марангони, соответствующего появлению поверхностной волны, от аспектного отношения для: (1) и (2) – цилиндрическая и спиральная волна, обнаруженные в диссертационном исследовании, (3) – поверхностная волна, обнаруженная в исследованиях Швабе [45, 53, 54], (4) – данные из работы Смита и Дэвиса [30].

этом же говорят и результаты визуализации структур, представленные в статьях Д. Швабе [45, 53, 54]. На Рис.1.18 приведены изображения, полученные теневым методом и с помощью ИК камеры, и схематическое изображение спиральной волны, наблюдаемой авторами статьи. В силу ограниченности горизонтальных размеров слоя, волны не успевают достаточно развиться, но, тем не менее, видно явное сходство с поверхностными структурами, полученными в диссертационном исследовании.

Здесь следует отметить, что, в отличие от коаксиального слоя, гидротермические волны не могут развиваться в рассматриваемой нами геометрии. В экспериментах такой тип неустойчивости всегда зарождается вблизи холодной границы в месте поворота течения. В нашем же случае холодная граница слоя над нагревателем проницаема, что не дает развиваться возмущениям в виде гидротермической волны. Таким образом, в рассматриваемой

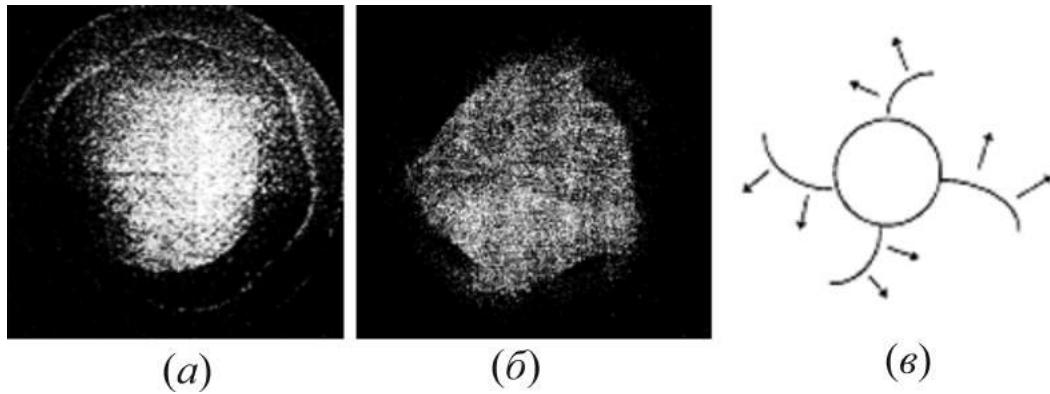


Рис. 1.18. Изображения поверхностной волны, полученные в работах [45, 53, 54] теньвым методом (а) и с помощью ИК камеры (б). (в) – схематическое изображение поверхностной волны, восстановленное по результатам наблюдений.

мом нами случае затопленного твердотельного источника тепла, расположенного на поверхности полубесконечного объема жидкости, поверхностные волны оказываются единственным типом возможной неустойчивости. Причем в рассматриваемой геометрии такие волны не ограничены пределами слоя над источником, где они зарождаются, и могут распространяться далее, формируя полноценную цилиндрическую или спиральную волну. В случае же затопленного источника тепла, индуцируемого излучением, обсужденные выше причины неустойчивостей пропадают, что делает такую конфигурацию самой устойчивой из всех известных моделей в рамках цилиндрической геометрии.

2. Концентрационно-капиллярная конвекция от затопленного локализованного источника массы.

Эта глава посвящена задаче о затопленном источнике поверхностно-активного вещества (ПАВ или сурфактант от английского surface active agent). Подробнее свойства и классификация такого типа веществ будет обсуждаться в Главе 3. Здесь же ограничимся лишь основным определением сурфактанта, как вещества, выход молекул которого на межфазную поверхность ведет к уменьшению поверхностной энергии. Наличие источника ПАВ на поверхности приводит к локальному уменьшению поверхностного натяжения и, следовательно, возникновению поверхностного течения, именуемого в литературе концентрационно-капиллярным или концентрационным течением Марангони. На первый взгляд проблема идентична задаче о тепловом источнике, рассмотренной в предыдущей главе. Действительно, гравитационное всплытие более теплой жидкости в случае источника тепла или более легкого раствора сурфактанта в случае источника массы приводит к формированию на поверхности локального пятна, характеризующегося более низким значением поверхностного натяжения. И в том и в другом случае это ведет к возникновению на границе раздела касательного напряжения и, как следствие, поверхностного конвективного течения, термокапиллярного или концентрационно-капиллярного. Формально, ситуации одинаковы с точностью до замены переменной в уравнении для зависимости коэффициента поверхностного натяжения от температуры $\sigma = \sigma_0 - \sigma_T \Delta T$ или от концентрации растворенного сурфактанта $\sigma = \sigma_0 - \sigma_C C$, и, на первый взгляд, достаточно рассмотреть только одну из них. Тем не менее, эти два типа поверхностного течения существенно отличаются вследствие целого ряда причин.

Основное различие теплового и концентрационного случаев заключается в разной скорости переноса тепла и массы по отношению к скорости переноса импульса в жидкости. В тепловых конвективных задачах время

жизни теплового и гидродинамического возмущений сопоставимы. Число Прандтля, которое равно отношению этих двух времен, для обычных в традиционной гидродинамике жидкостей, обычно, порядка $Pr \sim (10^0 - 10^1)$. Как следствие, конвективное течение не может существенно повлиять на распределение температуры, навязываемое граничными и начальными условиями, которое оказывается «вмороженным» в пространство, создавая, приблизительно, неизменные условия для поддержания движения жидкости. Диффузия массы для обычных жидкостей происходит на два-три порядка медленнее диффузии тепла, поэтому в концентрационных конвективных задачах время жизни концентрационного и гидродинамического возмущений существенно отличаются. Число Шмидта $Sc = \nu/D$, равное отношению этих двух времен, составляет порядка $(10^2 - 10^3)$. В таких условиях распределение концентрации оказывается «вмороженным» в объем жидкости, двигаясь вместе с ним. В результате, концентрационные конвективные течения, в отличие от тепловых, демонстрируют, как правило, нестационарную динамику. По этой причине количество экспериментальных исследований концентрационно-капиллярных задач на порядок меньше термокапиллярных, поскольку создавать, поддерживать постоянным и контролировать распределение концентрации в объеме жидкости намного сложнее, чем распределение температуры.

Другим существенным отличием рассматриваемых задач является граничное условие на свободной поверхности. В тепловом случае температура непрерывно меняется при переходе из объема на границу раздела, не испытывая скачка. Иная ситуация в концентрационном случае. Поскольку выход молекулы сурфактанта сопровождается уменьшением энергии системы, то на границе раздела раствора всегда имеется избыток сурфактанта по отношению к объему. Концентрация на поверхности есть результат динамического равновесия между процессами адсорбции и десорбции и определяется, в основном, концентрацией молекул сурфактанта в объеме. Такой поверхностный слой выделяют в особую поверхностную фазу, описываемую отдельным уравнением, учитывающим перенос молекул поверхностным течением, а также двумерную диффузию и двумерную вязкость в слое сурфактанта. Учитывая перечисленные выше различия тепло-

вого и концентрационного случаев, следует ожидать различий в режимах и условиях устойчивости течений в рассматриваемой задаче о затопленном источнике.

В данной главе представлены результаты экспериментального исследования возникновения, структуры и устойчивости концентрационного (гравитационного и Марангони) конвективного течения от источника слабо растворимого ПАВ, расположенного вблизи межфазной поверхности. К сожалению, опубликованных работ по данной тематике не так много в отличие от случая источника тепла. Ситуация, когда вблизи межфазной поверхности расположен источник ПАВ, с гидродинамической точки зрения не изучена. Большую часть работ можно встретить в физико-химической литературе, и посвящены они исследованиям явления «автоосцилляций поверхностного натяжения». Впервые данное явление было описано в [65], авторы которого обнаружили периодические изменения коэффициента поверхностного натяжения и поверхностного потенциала межфазной границы раздела в присутствии растворяющегося источника ПАВ постоянной мощности в виде капли, расположенной вблизи поверхности. Позднее это явление было исследовано для систем жидкость-газ [66–68] и жидкость-жидкость [69–71] с применением различных сурфактантов. В частности, было обнаружено, что при глубине расположения источника, большей некоторого критического, наблюдается колебательный режим изменения поверхностного натяжения. При меньших глубинах после первого колебания устанавливался режим монотонного уменьшения поверхностного натяжения со временем. Большинство авторов было отмечено наличие конвективного движения на поверхности. В [67] сделана попытка построения теоретической модели, основанная на объяснении наблюдаемого явления автоосцилляций, как результата конкуренции адсорбционно-десорбционных процессов и конвекции Марангони. Задача была рассмотрена в отсутствие гравитации. Авторами предложен следующий физический механизм для объяснения наблюдаемых колебаний. Выход сурфактанта на поверхность за счет диффузионных процессов приводит к развитию концентрационной конвекции Марангони. За счет ограниченного размера поверхности молекулы сурфактанта накапливаются вблизи внешних стенок резервуа-

ра, не успевая десорбироваться в объем. Это приводит к формированию встречного градиента поверхностного натяжения. Возникающее в результате встречное концентрационно-капиллярное течение задавливает исходное, и движение жидкости прекращается. Вынос сурфактанта из объема приводит к новому периоду колебательного процесса. При увеличении интенсивности исходного конвективного течения вторичное движение от стенок не может развиваться, что приводит к квазистационарному режиму после первого колебания. Модель только качественно воспроизводила наблюдаемые режимы, тогда как сравнение количественных характеристик показывало существенные различия. Прямых исследований структуры конвективного течения и распределения сурфактанта в объеме с целью подтверждения предложенного механизма проведено не было. Между тем, физическая постановка вызывает много вопросов. В частности, для сурфактантов, применяемых в цитируемых выше экспериментах, характерны очень быстрые времена адсорбционно-десорбционных процессов порядка 10^{-2} с, что не должно приводить к описываемым в теории эффектам. Далее в разделе будет показано, что некорректная постановка эксперимента и отсутствие информации о структуре течения и распределении сурфактанта в объеме привели к неверной физической интерпретации наблюдаемых явлений.

2.1. Экспериментальная установка и методики измерений.

Ключ к пониманию природы процессов возникновения и устойчивости концентрационного (гравитационного и Марангони) конвективного движения и его взаимосвязи с распределением ПАВ в объеме жидкости лежит в необходимости одновременного наблюдения полей концентрации ПАВ и структуры возникающих конвективных течений. Для этого создан экспериментальный комплекс, в котором были реализованы сразу несколько экспериментальных методик визуализации и измерения различных физических параметров. Для визуализации распределения растворенного сурфактанта был применен интерферометрический метод. Простота и высокая точность данного метода сделали его практически «золотым стандартом» во многих концентрационных задачах. Однако, его применение свя-

зано с рядом ограничений. В частности, восстановление, даже качественное, трехмерных объектов представляет собой трудоемкий процесс, а в случае несимметричного распределения ПАВ восстановление трехмерного поля концентрации и получение количественной информации оказывается, часто, просто невозможным. Чтобы избежать перечисленных трудностей, задача была исследована в плоской вертикальной кювете с размерами $9.0 \times 4.5 \times 0.38 \text{ см}^3$, схематически изображенной на Рис.2.1. Боковые стенки кюветы, выполненные из оптического стекла интерференционного качества, формировали ячейку интерферометра Физо, собранного по автоколлимационной схеме. Исходная интерференционная картина настраивалась на полосу бесконечной толщины. Соотношение толщины кюветы и размеров источника массы, который подробно будет обсужден ниже, не позволяют говорить о приближении Хеле-Шоу – течение остается трехмерным, по крайней мере, вблизи источника. Тем не менее, изменения концентрации в направлении распространения светового пучка интерферометра минимальны, что позволяет рассматривать ситуацию, как квазидвумерную.

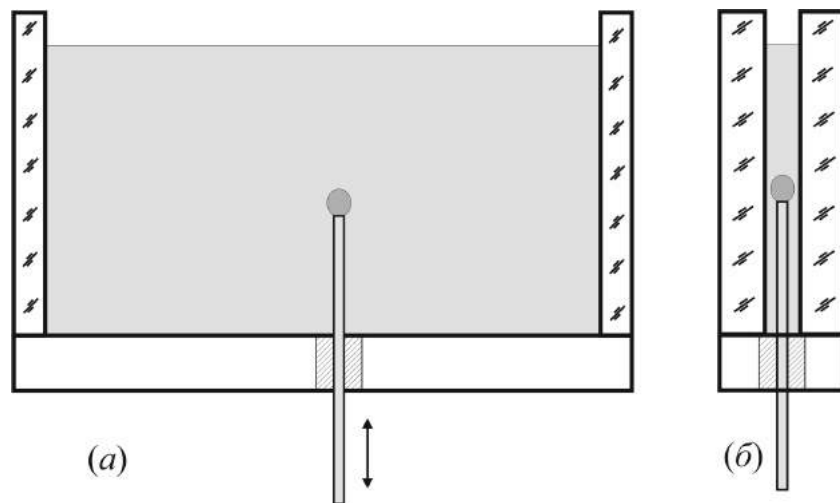


Рис. 2.1. Схема экспериментальной кюветы и расположение источника ПАВ. (а) – вид спереди, (б) – вид сбоку.

Добавление светорассеивающих частиц (полые стеклянные посеребрённые сферические частицы со средним диаметром 10 мкм и нейтральной плавучестью) и применение стандартной методики светового ножа позволяло визуализировать поле скорости в ячейке. При создании светового ножа использовался лазер с длиной волны $\lambda = 532 \text{ нм}$, в то время как в интер-

ферометре применялся источник когерентного излучения с длиной волны $\lambda = 633$ нм. Использование лазеров с разной длиной волны в интерферометре и при создании светового ножа и применение светофильтров-насадок на объективах видеокамер позволяло проводить независимые одновременные наблюдения распределения концентрации ПАВ и картины течения. Интерференционная картина и изображение частиц в плоскости светового ножа записывались при помощи двух цифровых видеокамер с высоким пространственным и временным разрешением. Синхронизированные по времени изображения с видеокамер передавались на персональный компьютер.

Помимо общей визуализации поля скоростей в экспериментальной установке были также предусмотрены локальные измерения скорости конвективного потока. С этой целью был специально разработан и создан анемометрический датчик малых размеров. Основу датчика составляет спай медь-константановой термопары (диаметр медного и константанового проводов 0.1 мм), освещенный светом от полупроводникового лазера. Малая интенсивность лазерного света и пренебрежимо малый коэффициент поглощения внешней жидкости на выбранной длине волны излучения не приводят к нагреванию жидкости и созданию в ее объеме локализованного источника тепла. В то же время интенсивности лазера достаточно для слабого нагрева спая термопары. Второй спай термопары расположен в емкости с фиксированной температурой. В отсутствие движения жидкости температура активного спая, расположенного в ячейке, определяется интенсивностью лазерного излучения и эффективностью теплоотдачи в жидкость, определяемой в данной ситуации только теплопроводным механизмом. Возникновение конвективного течения вокруг спая термопары приводит к появлению дополнительного механизма теплоотдачи и, как следствие, к уменьшению температуры спая. Предварительная градуировка на известном течении позволяет использовать такое несложное устройство для измерения скорости потока в изотермической жидкости. В силу малых размеров спая характерное время релаксации температуры оказывается очень коротким, что позволяет исследовать нестационарные процессы даже в случае достаточно быстрого изменения скорости со временем.

Ячейка заполнялась водой высокой степени очистки. Источником

Таблица 2.1. Физико-химические свойства использованных в исследованиях спиртов. ρ – плотность спирта, D – коэффициент диффузии спирта в воде, C_{max} – концентрация спирта, соответствующая предельной растворимости, $\Delta\rho_{max}$ – перепад плотности между водой и раствором с концентрацией, соответствующей предельной растворимости, σ_c – коэффициент концентрационной зависимости поверхностного натяжения, Bo_{dyn}^c – концентрационное динамическое число Бонда, рассчитанное для глубины погружения источника 0.1 см.

Спирт	ρ , г/см ³	D , 10 ⁻⁵ см ² /с	C_{max} , моль/л	$\Delta\rho_{max}$, г/см ³	σ_c 10 ³ , $\frac{\text{дин}\cdot\text{л}}{\text{см}\cdot\text{моль}}$	Bo_{dyn}^c
н-бутанол	0.809	0.975	1.06	0.017	1.2	$0.37\cdot 10^{-2}$
н-пентанол	0.814	0.861	0.25	0.004	0.7	$0.41\cdot 10^{-3}$
н-гексанол	0.819	0.781	0.058	0.0014	0.2	$0.34\cdot 10^{-4}$

ПАВ являлась капля слаборастворимого вещества. В качестве последнего в экспериментах были использованы спирты – члены одного гомологического ряда, от бутанола до гексанола – имеющие предельную растворимость в воде, что позволяло иметь четкую границу раздела с водой. Физико-химические свойства использованных спиртов приведены в Таблице 2.1. Капля формировалась на конце тонкой (0.9 мм внешний диаметр) иглы, помещаемой в ячейку через специальное отверстие в дне (см. Рис.2.1). Вертикальное положение среза иглы относительно границы раздела вода-воздух могло меняться с точностью 0.1 мм. В ходе проведения эксперимента задавался размер капли и глубина ее погружения, отсчитываемая от верхнего края капли, и проводились наблюдения распределения концентрации ПАВ и структуры конвективного течения.

2.2. Результаты экспериментов.

Результаты проведенных исследований показали, что структура наблюдаемого конвективного течения существенно зависит от применяемого сурфактанта, положения источника относительно границы раздела и его размера. Сразу после формирования капли диффундирующий через

ее границу сурфактант начинает всплывать под действием силы Архимеда, формируя конвективный факел, распространяющийся к поверхности. Дальнейший сценарий зависит от глубины погружения источника. Если последний расположен относительно глубоко, то факел не достигает поверхности, полностью растворяясь на пути движения в окружающей жидкости (см. Рис.2.2). Концентрационно-капиллярная конвекция при этом режиме не возникает. Ситуация аналогична случаю теплового источника, рассмотренному в предыдущем разделе, когда тепловой факел, порождаемый глубоко расположенным источником не приводил к развитию термокапиллярной конвекции, успевая остыть во время всплытия. Есть, однако, и существенное различие сравниваемых ситуаций. Если критическая глубина, при которой развивалась термокапиллярная конвекция, была сравнима с размерами источника, то в концентрационном случае конвекция на поверхности развивалась при глубине, равной, примерно, десяти размерам капли. Такое отличие, безусловно, связано с существенной разницей в скорости диффузионных процессов тепла и вещества, о которой говорилось выше.

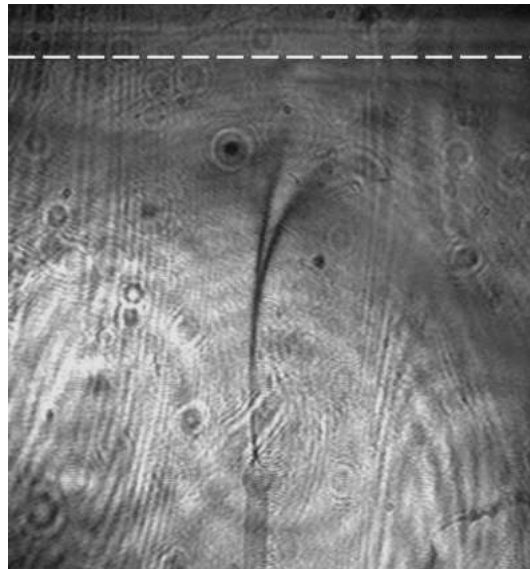


Рис. 2.2. Распределение ПАВ при глубоком расположении источника. Штриховая линия отмечает границу раздела вода-воздух.

При меньших глубинах погружения источника массы конвективный факел достигает поверхности раздела (см. Рис.2.3а), где возбуждает концентрационно-капиллярную конвекцию (см. Рис.2.3б). Конвективное движение достаточно быстро разрушает приповерхностную часть факела

(см. Рис.2.3*в*) и выравнивает концентрацию ПАВ вдоль поверхности воды, вследствие чего конвекция Марангони прекращается. Затем диффузионные и гравитационные конвективные процессы восстанавливают первоначальное распределение ПАВ в объеме жидкости (см. Рис.2.3*г*), что приводит к очередной вспышке концентрационно-капиллярного конвективного движения. Таким образом, в системе устанавливается автоколебательный режим конвекции, когда непрерывно подводимый от источника сурфактант приводит к переменному во времени конвективному движению, состоящему из фазы быстрого и интенсивного концентрационно-капиллярного движения и длительной фазы медленного восстановления поля концентраций гравитационным механизмом. Такой режим негармонических автоосцилляций может продолжаться очень долгое (порядка нескольких часов для слаборастворимых спиртов) время вплоть до полного растворения капли.

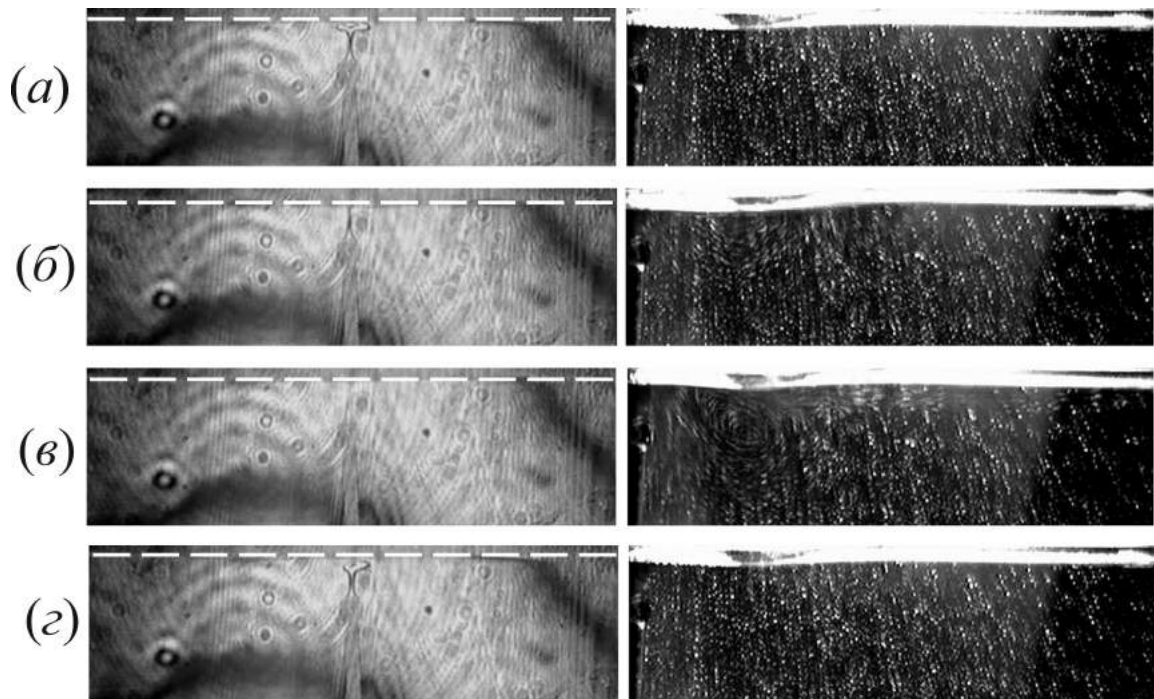


Рис. 2.3. Интерферограммы (слева), иллюстрирующие распределение концентрации ПАВ в объеме, и трековые изображения (справа), показывающие структуру конвективного течения в объеме, в разные моменты времени в течение одного периода T колебательного режима, отсчитываемого с момента возникновения концентрационно-капиллярной конвекции: (а) – $t = -0.001T$, (б) – $t = 0.001T$, (в) – $t = 0.01T$, (г) – $t = 0.99T$. Штриховая линия отмечает положение границы раздела вода-воздух.

На Рис.2.4 приведена зависимость скорости конвективного течения от времени, измеренная анемометрическим датчиком, который помещался на расстоянии 1 мм от оси симметрии факела на глубине 1 мм под поверхностью воды. Стрелками на графике отмечены моменты времени, соответствующие фотографиям на Рис.2.3. Видно, что в момент выхода ПАВ на поверхность скорость возрастает от практически нулевого значения до нескольких сантиметров в секунду за очень короткое время, вслед за чем следует период относительно медленного убывания скорости до нуля.

Период обнаруженных автоосцилляций существенно зависит от всех трех управляющих параметров задачи: применяемого сурфактанта, глубины погружения источника и размера капли. На Рис.2.5а представлена зависимость периода колебаний от обратной глубины $1/h$, обезразмеренной по диаметру капли d , для двух капель гексанола различного диаметра. Видно, что характер зависимости существенно различается для больших и малых капель. В случае относительно большого размера источника кривая имеет максимум, причина появления которого становится ясна из анализа синхронизированных видеозаписей поля скорости и концентрации. При больших глубинах погружения, когда концентрация ПАВ в факеле у поверхности мала за счет частичного растворения факела при всплывании в окружающей жидкости, слабоинтенсивное движение Марангони существует только вблизи поверхности, разрушая лишь небольшую приповерхностную часть факела. Период колебаний при этом относительно мал, так как системе требуется короткое время для восстановления изначального распределения ПАВ. Приближение источника к поверхности приводит к увеличению интенсивности концентрационно-капиллярной конвекции, а, следовательно, и к более глубокому проникновению течения, которое разрушает все большую часть факела. Максимальный период наблюдается, когда течение проникает настолько, чтобы разрушить не только факел, но и распределение концентрации вблизи поверхности капли. Дальнейшее приближение источника к поверхности воды ведет к уменьшению периода, что вызвано уменьшением времени, за которое вновь образованный факел достигает поверхности.

Для источников меньшего размера максимум отсутствует.

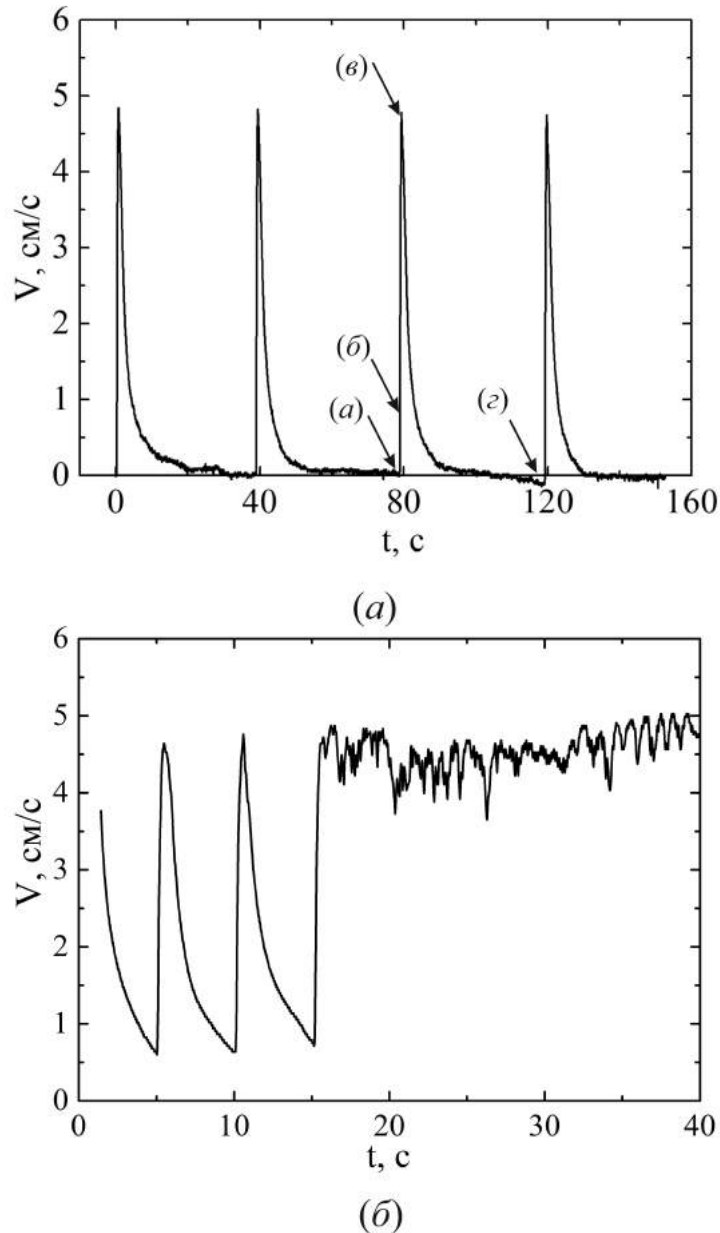


Рис. 2.4. Изменение скорости конвективного течения со временем для: (а) – капли *n*-гексанола $d = 1.5$ мм, $h = 2.1$ мм; (б) – капли *n*-бутанола $d = 1.2$ мм.

Концентрационно-капиллярная конвекция в случае малых капель возникает при меньших, по сравнению с каплями большего размера, глубинах, что объясняется меньшим количеством сурфактанта, выносимым с поверхности капли в единицу времени, а, следовательно, и меньшей концентрацией ПАВ в факеле. При таком близком к поверхности расположении источник и порождаемый им факел оказываются сразу в зоне действия конвекции Марангони. Интересно отметить, что, несмотря на

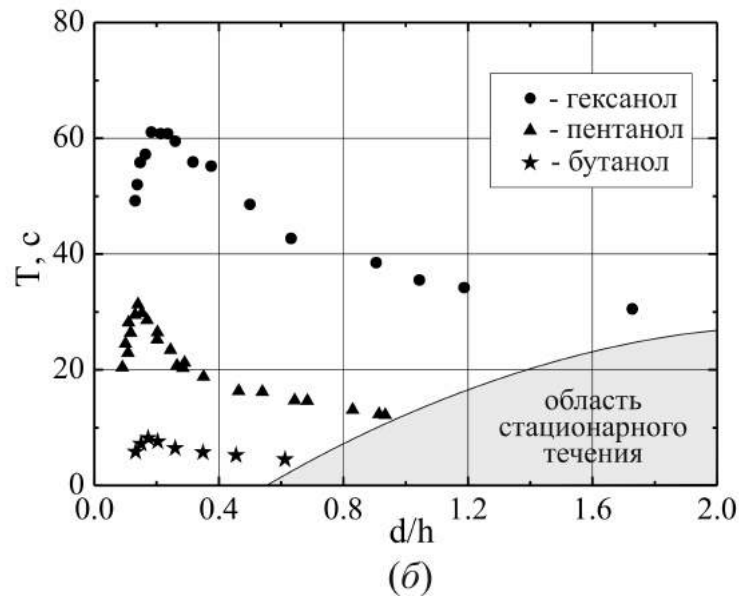
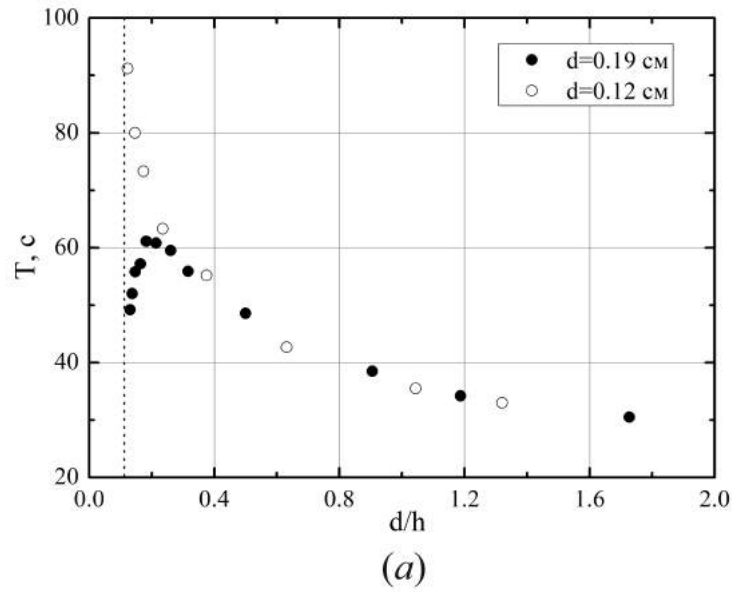


Рис. 2.5. (а) – зависимость периода колебаний от обратной глубины $1/h$, обезразмеренной по диаметру капли d , для двух капель гексанола различного диаметра (значения указаны на графике). (б) – зависимость периода колебаний от обратной глубины h , обезразмеренной по диаметру капли d , для трех различных ПАВ (указаны на графике).

различную для капель разного размера глубину погружения, при которой возбуждается концентрационно-капиллярная конвекция, безразмерная глубина оказывается одинаковой (вертикальная штриховая линия на Рис.2.5а). Как уже было отмечено выше она составляет, примерно, десять размеров капли.

Период колебаний зависит от применяемого сурфактанта. На Рис.2.5б

представлена зависимость периода колебаний от безразмерной глубины погружения для капель, сформированных тремя различными ПАВ: гесанолом, пентанолом и бутанолом. Для простоты восприятия приведены данные только для капель относительного большого размера, для которых наблюдались зависимости с максимумом. Видно, что при сохранении общего для всех трех сурфактантов вида зависимости характерный период колебаний разный. При переходе к следующему члену гомологического ряда с более короткой молекулой длительность одного цикла уменьшается, примерно, в три раза.

Анализ зависимостей скорости конвективного течения от времени, измеренных анемометрическим датчиком, показывает, что период при смене сурфактанта меняется, в основном, за счет релаксационной фазы, тогда как продолжительность быстрой фазы остается практически неизменной. Длительность релаксационной фазы определяется гравитационным, Рэлеевским механизмом, ответственным за скорость формирования и всплытия факела и, следовательно, за восстановление неоднородного распределения концентрации у поверхности. Продолжительность быстрой фазы определяется концентрационно-капиллярным, Марангониевским механизмом, отвечающим за конвективное перемешивание концентрационной неоднородности вблизи границы раздела. Оценим интенсивность каждого из механизмов в отдельности. Число Рэлея, отражающее интенсивность гравитационного механизма, запишется для концентрационного случая в виде

$$Ra = \frac{g\beta_c C_{\max} h^3}{\nu D} = \frac{g\Delta\rho_{\max} h^3}{\eta D},$$

где β_c – концентрационный коэффициент объемного расширения, h – глубина погружения источника, C_{\max} и ρ_{\max} – концентрация и плотность раствора сурфактанта с концентрацией, соответствующей его предельной растворимости. При $h = 0.1$ см величина данного безразмерного параметра для гексанола, пентанола и бутанола составляет $1.8 \cdot 10^4$, $4.6 \cdot 10^4$ и $17.0 \cdot 10^4$, соответственно. Видно, что при одинаковых условиях интенсивность гравитационного механизма увеличивается, примерно, в три-четыре раза для соседних гомологов за счет увеличения растворимости сурфактанта. Интенсивность поверхностных явлений может быть оценена из величины чис-

ла Марангони, которое для концентрационного случая запишется в виде

$$Ma = \frac{\sigma_c C_{\max} h}{\eta D} = \frac{\Delta\sigma_{\max} h}{\eta D},$$

где σ_c – концентрационная зависимость поверхностного натяжения, отражающая величину поверхностной активности, $\Delta\sigma_{\max}$ – перепад поверхностного натяжения между водой и раствором сурфактанта с концентрацией, соответствующей его предельной растворимости. При $h = 0.1$ см величина данного безразмерного параметра для гексанола, пентанола и бутанола составляет $5.1 \cdot 10^7$, $4.8 \cdot 10^7$ и $4.6 \cdot 10^7$, соответственно. Видно, что при переходе к более короткому гомологу убывание поверхностной активности компенсируется ростом предельной концентрации. В результате, интенсивность конвекции Марангони остается, практически, неизменной. Таким образом, уменьшение периода колебаний конвективного движения происходит за счет роста вклада гравитационного механизма конвекции по отношению к концентрационно-капиллярному. По аналогии с тепловыми задачами введем концентрационное динамическое число Бонда

$$Bo_{dyn}^c = \frac{Ra_c}{Ma_c} = \frac{g\Delta\rho_{\max}h^2}{\Delta\sigma_{\max}},$$

отражающее отношение интенсивностей Рэлеевского и Марангониевского механизмов. На Рис.2.6 приведена зависимость безразмерного периода колебаний

$$\tilde{T} = \frac{T}{\tau_\nu} Bo_{dyn}^c$$

($\tau_\nu = h^2/\nu$ – характерное вязкое время) от безразмерной глубины погружения источника для экспериментов с различными сурфактантами. Видно, что нормировка на динамическое число Бонда позволяет объединить экспериментальные результаты, полученные для разных сурфактантов, в единую зависимость, что подтверждает сделанное выше предположение о соотношении интенсивностей гравитационного и поверхностного механизмов, как главном управляющем параметре задачи. На графике также приведены результаты численного расчета [8], демонстрирующие хорошее согласие с экспериментом.

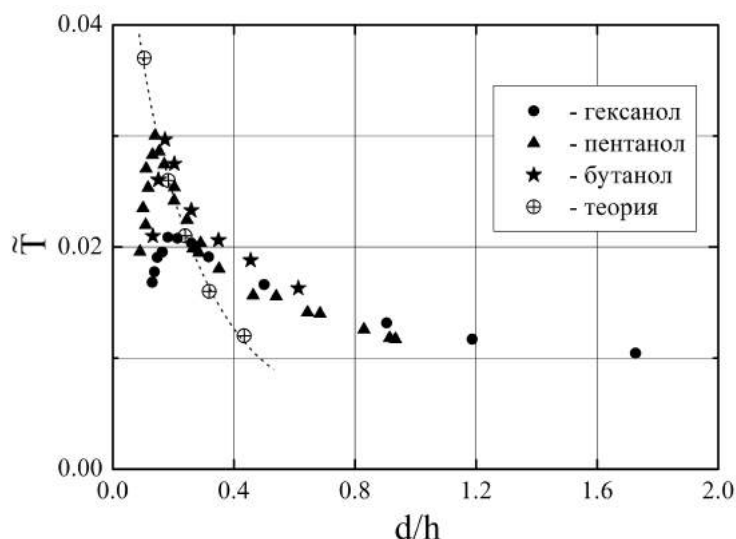


Рис. 2.6. Зависимость безразмерного периода колебаний от безразмерной глубины погружения источника для экспериментов с различными сурфактантами. Открытые символы – результаты численного счета [8].

Рост вклада Рэлеевского механизма при использовании более короткого сурфактанта приводит не только к существенному изменению периода колебаний, но и появлению нового режима конвективного движения. В случае гексанола и более длинных спиртов колебательный режим конвекции сохраняется вплоть до контакта капли с границей раздела (см. Рис.2.5б). Следует отметить, что строго нулевой глубины погружения достичь не удастся, так как в быстрой фазе интенсивное конвективное движение слегка вытягивает каплю в вертикальном направлении, что приводит к более раннему контакту капли и поверхности уже на расстояниях порядка двух-трех десятых долей миллиметра. Касание капли и границы раздела приводит к отрыву капли и ее выходу, как целое, на поверхность и, следовательно, к кончанию эксперимента. За исключением этого эффекта колебательный режим является единственно возможным для спиртов с длинной молекулой. В случае пентанола и бутанола колебания наблюдаются только при относительно глубоком расположении капли. Приближение источника ПАВ к границе раздела ведет к более быстрому восстановлению факела. Наконец, при некотором критическом расстоянии до поверхности время восстановления становится меньше периода колебаний. При этом количества сурфактанта, поступающего с поверхности капли на границу раздела, оказывается

достаточным для поддержания постоянного распределения концентрации вещества вблизи поверхности воды и, следовательно, постоянной интенсивности конвективного движения. На Рис.2.3б приведена зависимость скорости конвективного течения от времени для капли бутанола. В ходе эксперимента расстояние от капли до поверхности плавно уменьшалось вблизи критического значения. На рисунке представлен только небольшой, наиболее интересный участок временной зависимости, соответствующий моменту смены колебательного режима на стационарный. На Рис.2.5б отмечена область существования стационарного конвективного течения. Видно, что для бутанола критическая глубина погружения, соответствующая смене режимов, в полтора раза больше, чем для пентанола.

2.3. Обсуждение результатов.

Представленные результаты исследований достоверно показывают, что причиной периодических изменений поверхностного натяжения или поверхностного электрического потенциала, наблюдаемых в [66–71], является переменный во времени массоперенос ПАВ от источника на межфазную границу, обусловленный колебательным характером конвективного течения. Развитие интенсивной концентрационно-капиллярной конвекции в активной фазе приводит к переносу большого количества ПАВ, содержащегося в факеле, на поверхность воды, что приводит к резкому увеличению его концентрации на поверхности и, следовательно, к быстрому уменьшению поверхностного натяжения. Затем в течение периода восстановления первоначального распределения ПАВ в объёме, когда конвекция Марангони отсутствует, избыточное количество ПАВ десорбируется и затем диффундирует из приповерхностного слоя обратно в слой жидкости, что обуславливает медленное увеличение поверхностного натяжения. Период конвективных колебаний, представленный в данном разделе, и период колебаний поверхностного натяжения, измеренный в [68] для аналогичных сурфактантов, хорошо согласуются. Небольшие различия связаны, скорее всего, с более быстрым затуханием конвективного движения в более узкой кювете, применяемой в диссертации Ю, по сравнению с трехмерным случаем.

Тем не менее, сравнительный анализ результатов показывает и наличие принципиальных расхождений. В процитированных работах для всех использованных ПАВ колебательный режим сменялся на стационарный при глубине погружения капли меньше 6 – 8 мм, тогда как в представленных здесь экспериментах стационарный режим был обнаружен только для коротких спиртов и при гораздо меньших глубинах погружения.

Чтобы понять причины столь существенных расхождений, была проведена серия дополнительных экспериментов. Игла, на конце которой формируется капля, была подведена в жидкость не через дно, а через границу вода-воздух, как это было реализовано в [66–68]. При такой постановке эксперимента капля более легкого по отношению к окружающей жидкости ПАВ удерживается на конце иглы лишь благодаря капиллярным силам, действующим на линию контакта трех сред на острой кромке иглы. При уменьшении глубины погружения капля попадает в область интенсивного течения, возникающего в период быстрой фазы колебания. Вязкие напряжения со стороны течения, направленного в объеме вверх, и сила Архимеда приводят к отрыву линии контакта капли от кромки иглы, в результате чего часть капли растекается в виде тонкой пленки по боковой поверхности иглы, формируя на поверхности раздела постоянный источник, мощность которого никак не зависит от окружающего конвективного течения. Именно этот приток ПАВ к поверхности и обеспечивает медленное стационарное уменьшение поверхностного натяжения, наблюдаемое в [66–68]. Представленные в диссертации результаты экспериментов в корректной постановке, с подведением иглы через дно кюветы, показывают, что колебательный режим конвекции при малых глубинах погружения источника не только не сменяется квазистационарным, но и становится более выраженным, и наблюдается для длинных гомологов вплоть до касания капли с границей вода-воздух. Таким образом, предложенная в [67] теоретическая модель является результатом некорректной постановки эксперимента и, как следствие, ошибочной интерпретации результатов. Более адекватная теоретическая модель, построенная с учетом представленных в разделе результатов экспериментальных исследований, учитывающая гидродинамические явления как на поверхности, так и в объеме жидкости, была предложена в [8].

Исследователями было показано, что при варьировании чисел Грасгофа $Gr = Ra/Pr$ и Марангони в численных расчетах наблюдаются оба – колебательный или стационарный – режима конвективного движения. Продемонстрировано хорошее согласие результатов лабораторного и численного экспериментов.

Необходимо отметить, что обнаруженный в экспериментах колебательный режим конвекции не является специфическим для рассматриваемой ситуации о затопленном источнике ПАВ. Появление подобных автоколебательных режимов релаксационной природы является, скорее, типичным в задачах о концентрационной конвекции Марангони. Так, например, Линде [72,73] указывает данный механизм в качестве основного в формировании нестационарных и волновых структур в задаче о диффузии сурфактанта через границу раздела двух жидких сред. Формирующиеся у поверхности в процессе диффузии сурфактанта случайные неоднородности концентрации порождают конвективные ячейки вследствие концентрационно-капиллярной неустойчивости. Интенсивная конвекция быстро размывает неоднородность, что приводит к затуханию конвективного течения. Хаотически возникающие короткоживущие конвективные ячейки формируют иерархическую систему, характеризующуюся определенными пространственным и временным спектрами, вследствие чего такой тип неустойчивости иногда называют в литературе «поверхностной турбулентностью». Синхронизация ячеек при определенных условиях может приводить к появлению так называемых релаксационных волн. Рассматривая нестационарную конвективную ячейку, как структурную единицу такой системы, Линде приводит в пример релаксационные автоколебания, возникающие вокруг капли ртути, помещенной в неоднородный водный раствор хлорида натрия [74]. Последний выступает в роли ПАВ по отношению к поверхности раздела ртуть-вода. Наличие градиента концентрации вдоль поверхности капли генерирует концентрационно-капиллярную конвекцию, которая гомогенизирует раствор вблизи включения, что, в результате, приводит к остановке движения жидкости. Восстановление неоднородного распределения концентрации Рэлеевским механизмом происходит за счет сохранения невозмущенной стратифицированной области вдали от капли. Позднее за-

дача о жидком включении, помещенном в стратифицированный раствор сурфактанта, была исследована для различных пар жидкостей и сурфактантов [75–80]. Так же как и в рассматриваемом в диссертации случае, период колебаний в такой системе зависел от сурфактанта. К сожалению, в указанных работах не было проведено систематического исследования с использованием ряда сурфактантов, что не позволяет провести анализ результатов с целью поиска безразмерных управляющих параметров. Несмотря на общую природу таких автоколебаний, имеются и существенные различия с рассматриваемой в данном разделе задачей. Во-первых, период колебаний в случае жидких включений намного больше. Причина, по всей видимости, состоит в различном соотношении размеров межфазной поверхности и характерного размера неоднородности. В случае затопленного источника неоднородность сосредоточена в небольшой, по сравнению с размером границы раздела, области. При медленном подводе сурфактанта от источника (малые значения динамического числа Бонда) маленькая по размеру неоднородность относительно быстро размывается конвективным течением, что обуславливает короткий период активной фазы и относительно длительный период релаксации. При интенсивном подводе сурфактанта от капли (большие значения динамического числа Бонда) локальная неоднородность сохраняется со временем. При этом, вдоль поверхности всегда сохраняется градиент поверхностного натяжения, вследствие чего в системе поддерживается постоянное по интенсивности конвективное течение. В случае капель или пузырьков ситуация обратная: неоднородность, занимающая весь объем окружающей жидкости, много больше размеров межфазной поверхности. Включение помещалось внутри широкой, по сравнению с диаметром капли или пузырька, диффузионной зоны между двумя однородными жидкостями. В такой ситуации активная фаза продолжается до тех пор, пока течение не гомогенизирует окружающую включение неоднородность по всей глубине. Релаксационная фаза также более длительная за счет большего размера восстанавливающейся гравитационными силами неоднородности. В результате, общий период колебаний оказывается значительно больше. Данное заключение подтверждает тот факт, что в узких горизонтальных каналах [76, 77], где размер неоднородности лимитируется

геометрией, наблюдаются более короткие периоды колебаний. Во-вторых, в указанных выше исследованиях никогда не наблюдалась стационарная конвекция, хотя использовались короткие спирты и карбоновые кислоты, которые, в соответствии с приведенными выше выводами, должны демонстрировать именно такой тип течения. Причина, скорее всего, в закрытом типе системы в случае жидких включений. Как уже было сказано выше, активная фаза продолжается до тех пор, пока течение на поверхности включения не гомогенизирует окружающую неоднородность по всей глубине. При этом внутренний запас энергии в системе заканчивается и не возобновится до восстановления изначального распределения концентрации. В рассматриваемом же в диссертации случае в систему всегда есть приток энергии в виде источника сурфактанта, что может поддерживать, в том числе, и стационарный режим конвективного течения.

Сравним результаты исследования двух ситуаций, рассмотренных в первых двух главах: источник тепла и источник массы. Сравнение полученных результатов показывает существенное различие в характере конвективных течений. Если для источника ПАВ, в основном, характерен колебательный режим конвекции, то в случае источника тепла конвекция Марангони всегда стационарна. Указанная в качестве причины во введении к данному разделу разность скоростей диффузии тепла и массы, безусловно, оказывает влияние на эволюцию течения. В частности, это приводит к более быстрому размытию неоднородности, созданной у поверхности источником массы. Однако, в качестве основной причины наблюдаемых различий следует выделить различную интенсивность капиллярного и гравитационного механизмов в концентрационном и тепловом случаях. Известно, что интенсивность концентрационно-капиллярного течения всегда намного больше термокапиллярного, что обусловлено большей зависимостью поверхностного натяжения от концентрации сурфактанта, чем от температуры. Если типичные значения температурного коэффициента поверхностного натяжения составляют $\partial\sigma/\partial T \sim 10^{-2}$ дин/(см · К), то концентрационный коэффициент поверхностного натяжения лежит, обычно, в пределах $\partial\sigma/\partial C \sim (10^2 - 10^4)$ дин · л/(см · моль) в зависимости от сурфактанта. Таким образом, интенсивность концентрационной конвекции

Марангони всегда намного превосходит тепловую, что приводит к более быстрому размытию неоднородности в концентрационном случае. Интенсивность гравитационного механизма определяется зависимостью плотности жидкости от температуры или концентрации. Здесь наблюдается та же ситуация. Коэффициент температурного расширения большинства жидкостей составляет $\beta_T \sim 10^{-3} K^{-1}$, тогда как коэффициент концентрационного расширения $\beta_c \sim 10^{-1} \text{ л} \cdot \text{моль}^{-1}$. Т.е. интенсивность свободноконвективного движения всегда больше в концентрационных задачах. Однако, для анализа результатов необходимо знать не интенсивности этих двух механизмов по отдельности, а их соотношение. Действительно, наблюдаемые релаксационные автоколебания являются результатом конкуренции двух механизмов конвективного массопереноса, один из которых (гравитационный) подводит сурфактант или тепло к границе раздела, создавая неоднородность, а другой (капиллярный) гомогенизирует их распределение. В зависимости от соотношения их интенсивностей возможно развитие колебательного или стационарного режимов. Соотношение вкладов, как уже указывалось выше, определяется величиной динамического числа Бонда: теплового Bo_{dyn}^T или концентрационного Bo_{dyn}^c . В Таблице 2.1 приведены значения данного безразмерного параметра для использованных спиртов для $h = 0.1$ см. Для теплового случая, рассмотренного в Главе 1, $Bo_{dyn}^T \approx 4 \cdot 10^{-2}$. Видно, что для обоих случаев капиллярный механизм всегда интенсивнее гравитационного. Однако, в концентрационном случае, особенно для длинных спиртов, разница в интенсивностях много больше. Видно также, что при переходе к более коротким гомологам величина динамического числа Бонда быстро увеличивается. С одной стороны, это обусловлено меньшей поверхностной активностью коротких спиртов. С другой стороны, увеличивается растворимость и, следовательно, концентрация, что ведет к большим перепадам плотности. Для бутанола концентрационное динамическое число Бонда становится одного порядка с тепловым. В результате, при малых глубинах погружения возможна смена колебательного режима на стационарный. Для следующего в ряду гомолога, изопропилового спирта, $Bo_{dyn}^T \approx 8 \cdot 10^{-2}$, что уже сравнимо с тепловым случаем. Здесь необходимо заметить, что изопропиловый спирт растворим в воде в любых концентра-

циях и, следовательно, не образует капли с межфазной границей, как более длинные спирты. Тем не менее, это не меняет постановку задачи, так как капля является всего лишь источником массы. В случае с изопропанолом таким источником является срез иглы. Были проведены дополнительные эксперименты, в которых чистый изопропиловый спирт подавался в объем воды через иглу, глубина расположения среза которой могла меняться. Расход составлял ~ 20 мкг/с, что, примерно, соответствовало массопотоку от капли бутанола диаметром 0.2 см. При глубинах, по крайней мере, до 2 см наблюдался стационарный режим конвективного течения. Таким образом, подтверждается предположение о решающей роли соотношения интенсивностей гравитационного и капиллярного механизмов конвекции на установление колебательного или стационарного режима конвективного течения в задаче о затопленном источнике тепла или массы.

Таким образом, диапазон значений динамического числа Бонда $Bo_{dyn} \sim 10^{-2}$ является, в некотором смысле, стыковым для тепловой и концентрационной задач о затопленном источнике. Безусловно, необходимо учитывать специфику концентрационного случая. В силу различных скоростей диффузии тепла и массы объемное распределение температуры и концентрации будут различными. Не следует забывать про механизмы адсорбции и десорбции. Однако, времена этих процессов для использованных спиртов $\sim 10^{-2}$ с. При большом объеме окружающей жидкости в рассматриваемой геометрии локального источника в полубесконечном резервуаре избыток сурфактанта на поверхности всегда будет быстро уходить в объем. Учитывая оба этих фактора можно утверждать, что не будет происходить накопления сурфактанта на границе раздела, и, следовательно, можно ограничиться упрощенными граничными условиями, близкими по постановке к тепловому случаю. С другой стороны, даже для самых коротких спиртов, метанола и этанола, концентрационная зависимость поверхностного натяжения воды остается намного больше температурной. Все это позволяет рассматривать в такой задаче источник массы, сформированный, например, потоком этилового спирта, как источник тепла аномальной интенсивности. Этот вывод пригодится нам при формулировании условий эксперимента в следующей главе.

3. Концентрационно-капиллярная конвекция от локализованного источника массы при наличии адсорбированного слоя сурфактанта.

Рассмотренные в двух предыдущих главах задачи о затопленном источнике тепла или массы относились к ситуации, когда базовая жидкость однородна по составу, т.е. состоит из молекул только одного сорта. Задача существенно усложняется, если жидкость двухкомпонентная. Один из компонентов смеси, в этом случае, может оказаться поверхностно-активным по отношению ко второму. В широком смысле поверхностно-активным веществом называется компонент в смеси, выход молекул которого на межфазную поверхность приводит к уменьшению поверхностной энергии (или поверхностного натяжения). Энергетически выгодный процесс замещения молекул на границе раздела приводит к формированию приповерхностного слоя с повышенной, по отношению к объему, концентрацией молекул ПАВ. Теоретически для любой жидкости можно подобрать межфазную поверхность, по отношению к которой она будет поверхностно-активной. Физическая химия, занимающаяся изучением процессов формирования таких слоев и их свойств, оперирует более узким определением сурфактанта, относя к ним лишь те вещества, которые способны проявлять поверхностную активность по отношению к межфазным поверхностям, сформированным водными системами. В дальнейшем мы также будем придерживаться такой терминологии. В соответствии с таким определением сурфактантами могут выступать вещества с амфифильной (или дифильной) структурой молекулы. Последнее предполагает существование в структуре молекулы гидрофильной (полярной) и гидрофобной (неполярной) частей. Плохая растворимость гидрофильной части в неполярной фазе и гидрофобной части в полярной фазе приводят к энергетически выгодному положению молекулы на межфазной границе, когда ее гидрофильная часть находится в водной фазе, а гидрофобная – в неполярной. Соотношение свойств обеих

частей молекулы определяет свойства сурфактанта, в частности, его растворимость в каждой из фаз и поверхностную активность. Количественно данное соотношение описывается числом гидрофильно-липофильного баланса (ГЛБ), предложенным впервые Грифффином [81] и позднее модифицированное Дэвисом с учетом разного влияния различных групп [82] $HLB = 7 + \sum_{i=1}^m g_i^w - \sum_{j=1}^n g_j^o$, где m и n – количество гидрофильных и гидрофобных групп в молекуле, g_i^w и g_j^o – групповые числа каждой из полярной и неполярной частей молекулы, которые были вычислены Дэвисом на основании проведенных экспериментов. Русанов [83] на основе термодинамических соотношений показал, что групповое число любой из частей определяется работой по ее перемещению между фазами $w^{\alpha\beta}$ и может быть рассчитано по формуле $g_i = 0.36w^{\alpha\beta}/kT$. Сурфактанты с $HLB > 7$ преимущественно растворимы в воде, с $HLB < 7$ – в неполярной фазе. В гомологических рядах, т.е. при одинаковой гидрофильной части, по мере роста длины гидрофобной углеводородной цепи происходит уменьшение числа ГЛБ, что приводит к уменьшению растворимости в водной фазе и росту поверхностной активности. Однако при дальнейшем росте ГЛБ происходит увеличение растворимости в неполярной фазе и, как следствие, уменьшение поверхностной активности. Наибольшую поверхностную активность демонстрирует гомолог, действие гидрофильной и липофильной частей которого полностью сбалансированы.

В случае свободной поверхности, когда в качестве неполярной фазы выступает воздух, сурфактанты существуют только в пределах водной фазы. В такой ситуации рост длины гидрофобной части молекулы в гомологическом ряду приводит к непрерывному увеличению поверхностной активности и уменьшению растворимости в воде. Начиная с некоторого порогового значения ГЛБ, различного для разных рядов, сурфактант становится полностью нерастворимым и способен существовать только в пределах поверхности в виде мономолекулярного слоя. В этом случае основной характеристикой ПАВ является так называемая изотерма поверхностного давления π (Γ) – зависимость поверхностного давления $\pi = \sigma_0 - \sigma$ (величина, показывающая разность поверхностных натяжений чистой субфазы

σ_0 и субфазы с адсорбированным слоем ПАВ σ) от поверхностной плотности сурфактанта Γ , измеренная при фиксированной температуре. Данная зависимость уникальна для каждого сурфактанта и является его основной характеристикой. Уменьшение расстояний между молекулами в слое при увеличении Γ приводит к росту взаимодействия между ними. В результате, двумерная поверхностная фаза претерпевает ряд фазовых переходов. В настоящее время выделяют четыре основных фазовых состояния нерастворимых сурфактантных пленок: газовая, жидко-расширенная, жидкая и конденсированная фазы [84, 85]. Каждому из них соответствуют отдельные участки на изотерме поверхностного натяжения, характеризующиеся отличающимися значениями $d\sigma/d\Gamma$.

Вещества со значениями числа ГЛБ, большими порогового, частично растворяются в водной фазе. Для растворимых сурфактантов характерен непрерывный массообмен между объемной и поверхностной фазами благодаря процессам адсорбции и десорбции. В состоянии динамического равновесия связь между объемной и поверхностной концентрацией устанавливается известным уравнением Гиббса

$$\Gamma = \frac{c}{RT} \frac{d\sigma}{dc}, \quad (3.1)$$

а основной характеристикой сурфактанта является изотерма поверхностного натяжения $\sigma(C)$. Из уравнения Гиббса видно, что содержание ПАВ на поверхности растет с увеличением объемной концентрации тем быстрее, чем больше поверхностная активность. Это значит, что для достижения одной и той же поверхностной концентрации необходимо внести в объем гораздо меньше молекул вещества с малым числом ГЛБ (старшие члены гомологического ряда с более длинной гидрофобной частью), чем вещества с большим ГЛБ (младшие члены гомологического ряда). При выведении системы из равновесия, например при изменении площади поверхности, характерное время релаксации адсорбционного слоя существенно меньше у более длинных гомологов, чем у коротких. Время релаксации также сильно зависит от структуры молекулы и может различаться на несколько порядков для различных гомологических рядов.

С гидродинамической точки зрения добавление в систему сурфак-

танта приводит к появлению ряда новых эффектов, не наблюдающихся в чистых жидкостях. Представим, что мы создали течение на свободной или межфазной поверхности, содержащей молекулы ПАВ. Механизм генерации не важен: это могут быть как течения термокапиллярной или концентрационно-капиллярной природы, так и созданные за счет вязкого увлечения при движении одной из граничащих фаз. Наличие движения на границе раздела будет приводить к конвективному переносу молекул сурфактанта. Вихревая и дивергентная составляющие такого поверхностного течения будут по разному взаимодействовать с адсорбционным слоем. Первая будет генерировать сдвиговые течения, не меняя локальной поверхностной концентрации сурфактанта. Влияние ПАВ будет проявляться в дополнительной поверхностной вязкости, отличной от объемной. Если в разреженных слоях, находящихся в газовом или жидкорасширенном фазовом состояниях, этими эффектами часто можно пренебречь, то для более конденсированных пленок вклад поверхностной вязкости может быть существенным. Более того, реология таких слоев часто оказывается неньютоновской [84]. Дивергентное течение в условиях ограниченной площади поверхности раздела будет приводить к перераспределению сурфактанта, нарушая его изначально равномерное распределение. В результате, на поверхности появляется градиент поверхностного натяжения, обусловленный зависимостью данного параметра от поверхностной концентрации σ (Γ) и направленный навстречу вызвавшему его течению. Таким образом, течение на поверхности раздела будет результатом одновременного действия двух встречных касательных напряжений: одно обусловлено наличием источника поверхностного течения (термокапиллярное, концентрационно-капиллярное или вязкое), и второе, появляющееся вследствие неоднородного распределения молекул сурфактанта на границе раздела. При этом задача получается нелинейной, так как интенсивность второго механизма зависит от интенсивности и структуры течения, вызванного первым механизмом. В тех областях поверхности, где касательные напряжения компенсируют друг друга, будут появляться так называемые застойные зоны, в пределах которых течение на границе раздела будет отсутствовать. Если баланс напряжений выполняется на всей поверхности, то

вся граница раздела останется неподвижной. В случае растворимого сурфактанта перераспределение молекул конвективным течением будет приводить к локальным отклонениям поверхностной концентрации от равновесного значения, что усилит адсорбционные или десорбционные процессы на разных участках поверхности. Эволюция структуры поверхностного течения будет при этом в большой степени зависеть от характерного времени релаксации поверхностной концентрации.

Таким образом, из вышесказанного видно, что внесение в жидкость небольшого количества ПАВ (для большинства сурфактантов достаточно концентраций, соответствующих одной молекуле сурфактанта на миллион молекул воды) способно критическим образом изменить не только интенсивность и структуру конвективного течения и, следовательно, интенсивность тепло- и массопереноса, но и тип граничного условия на межфазной границе. Все это подчеркивает актуальность изучения таких систем. Необходимость исследований обусловлена ещё и тем фактом, что именно с такими системами чаще всего приходится иметь дело как в промышленности, так и в природных системах. Действительно, в различных технологических процессах обычно используются многокомпонентные жидкие среды, во многих случаях имеющие свободную или межфазную поверхность. Чистые, однородные по составу жидкости являются скорее исключениями, применяемыми в научных исследованиях. Но даже в этом случае всегда остается проблема остаточных примесей, что может быть связано с недостаточной подготовкой исследуемой среды или экспериментальной установки. Как будет показано ниже, неучет данного фактора может приводить к неверной интерпретации экспериментальных результатов.

Нельзя сказать, что вопросы взаимодействия конвективного течения и адсорбционных слоев ПАВ были обойдены вниманием исследователей. В научной литературе можно найти множество публикаций, так или иначе затрагивающих обозначенные выше вопросы. Наиболее полно эта проблема была исследована как экспериментально, так и теоретически на примере задачи о всплытии пузырьков и капель в растворах ПАВ. Интерес к данной задаче был вызван необходимостью построения моделей для описания процессов барботирования, т.е. пропускания большого количества пузырьков

газа через слой жидкости. В отличие от хорошо известной задачи Стокса о движении твердой сферы в объеме жидкости, движение пузырька, свободная поверхность которого может двигаться, описывается уравнением Адамара-Рыбчинского [86, 87]. Коэффициент гидродинамического сопротивления движению пузырька при этом оказывается меньше, чем у твердой сферы того же диаметра. Однако измеренная в ряде экспериментальных работ скорость всплывающих пузырьков оказалась меньшей, чем предсказывала теория Хадамарда-Рыбчинского, и большей, чем давало уравнение Стокса. Объяснение было впервые предложено Фрумкиным и Левичем [88], которые предположили наличие в жидкости некоторого неконтролируемого в экспериментах количества остаточной поверхностно-активной примеси, молекулы которой, адсорбируясь на поверхности пузырька, меняют граничные условия для скорости. Согласно этой модели наличие движения приводит к конвективному перераспределению адсорбированных молекул ПАВ, которые переносятся в сторону заднего, по ходу движения, полюса. В результате, на поверхности пузырька возникает меридиональный градиент поверхностной концентрации ПАВ, что приводит к появлению встречного градиента поверхностного натяжения. В зависимости от соотношения величин двух касательных напряжений, вязкого и Марангониевского, возможна разная скорость на поверхности пузырька. Гипотеза была успешно подтверждена в экспериментальных исследованиях с водой высокой степени очистки и водными растворами ПАВ [89–93]. Однако, прямого экспериментального наблюдения распределения концентрации и скорости на поверхности пузырька, в силу малого (порядка миллиметра) размера исследуемой области, проведено не было. Влияние сурфактанта оценивалось по величине установившейся скорости всплытия. Численное моделирование с учетом адсорбционно-десорбционных процессов молекул ПАВ на поверхности пузырька показало качественное совпадение с результатами экспериментов [91, 94]. Количественное сравнение результатов затруднено, как правило, сложностью точного измерения параметров адсорбированных пленок, которые в теории часто выступают в роли свободных параметров, а также указанным выше отсутствием экспериментальных данных о распределении скорости и сурфактанта. Ещё одним свободным параметром, величина и

способы измерения которого будут подробно обсуждены в Главе 4, является коэффициент поверхностной диффузии, входящий в концентрационное число Пекле. От величины данного безразмерного параметра зависит сценарий обтекания пузырька потоком. При больших значениях числа Пекле, соответствующих малым скоростям поверхностной диффузии, реализуется режим обтекания, названный *stagnant cap*, при котором адсорбированный на поверхности пузырька слой молекул ПАВ сносится течением к заднему полюсу, где формирует застойную зону в виде шапки. Это приводит к образованию в объёме жидкости за пузырьком тороидального вихря, тормозящего его движение. Увеличение скорости поверхностной диффузии в численном моделировании приводит к размытию границы застойной зоны на поверхности пузырька и, в конце концов, к смене режима обтекания, при котором слой ПАВ неоднородно покрывает всю поверхность пузырька, а скорость жидкости на ней нигде не обращается в ноль.

Существенно больше возможностей для проведения экспериментальных измерений появляется в задаче о движении жидкости в протяженном канале со свободной поверхностью, на которую нанесен слой нерастворимого ПАВ [95–101]. Как и в задаче о движении пузырька, вязкое увлечение поверхностного слоя приводит к перераспределению ПАВ в сторону заднего по ходу движения жидкости барьера. Большие размеры исследуемой области позволяют регистрировать профиль свободной поверхности, поле скорости в объёме и на поверхности, а также концентрацию в монослое. Было показано, что положение границы застойной зоны существенно зависит от скорости потока и поверхностной плотности сурфактанта. При этом наблюдается деформация границы раздела (*Reynolds ridge*), обусловленная резким уменьшением поверхностной скорости на границе застойной зоны. В ряде работ отмечено наличие циркуляции жидкости на поверхности в области, занятой ПАВ [95, 96, 99, 101]. Данное явление авторы связали с неоднородным распределением скорости на поверхности, вызванным прилипанием жидкости на боковых границах канала. К сожалению, более подробного исследования вихревого течения в застойной зоне проведено не было.

В перечисленных выше примерах течение на поверхности создава-

лось за счет вязкого увлечения границы раздела существующим объемным течением. Несколько иная ситуация возникает, когда источник движения расположен на самой границе раздела и обусловлен наличием градиента поверхностного натяжения, создаваемого, например, неоднородным нагревом или составом на поверхности. В этом случае жидкость в объеме изначально неподвижна, и развитие конвективного течения определяется суммарным балансом касательных напряжений, приложенных к межфазной границе. В такой постановке основным становится вопрос о возможности зарождения конвективного движения. К таким исследованиям можно отнести проблему влияния сурфактанта на порог развития неустойчивости Бенара-Марангони, исследованную для случая чистой поверхности Пирсоном [102] и Нилдом [103]. В теоретической работе [104] было показано, что внесение нерастворимого сурфактанта увеличивает критическое значение числа Марангони на несколько порядков. Авторами было отмечено, что эффект стабилизации обнаружен для монотонной моды неустойчивости, и что, возможно, наиболее опасной в такой ситуации может стать колебательная мода, обусловленная конкуренцией двух механизмов на поверхности. Позднее именно такой сценарий был исследован Непомнящим [105] в серии теоретических исследований. Было показано, что в присутствии разреженного слоя нерастворимого сурфактанта колебательная мода становится наиболее опасной. Противоположный результат в аналогичной постановке был получен в другом теоретическом исследовании [106]. Исследуя неустойчивость Бенара-Марангони в присутствии разреженного слоя нерастворимого сурфактанта, авторы обнаружили стабилизацию монотонной моды. Критические числа Марангони, при которых развивалась неустойчивость, возрастали по мере увеличения поверхностной концентрации. Однако монотонная мода оставалась единственным возможным сценарием неустойчивости. При этом сурфактант отеснялся к краям конвективной ячейки, где формировал застойную зону. В средней части ячейки образовывалась свободная от ПАВ зона, внутри которой развивалось стационарное конвективное течение. К сожалению, экспериментов, способных проверить справедливость той или иной теоретической модели, до сих пор проведено не было.

Среди близких по постановке экспериментов можно выделить иссле-

дования конвективного течения от локализованных источников. В работах [107, 108] исследовалась деформация свободной поверхности тонкого слоя жидкости в ответ на локальное воздействие лазерным излучением. Показано, что отклик системы исчезает при нанесении на границу раздела сурфактанта даже в небольших, соответствующих газовой фазе, количествах. Поля скорости и концентрации не исследовались. В работах [109] источником локальной неоднородности поверхностного натяжения служила микрокапля водного раствора изопропилового спирта, вносимого на поверхность воды в ячейке Хеле-Шоу. Авторами обнаружен пороговый характер развития концентрационной конвекции Марангони: течение развивалось, когда концентрация спирта в капле превышала некоторое пороговое значение. Такое поведение было связано с наличием остаточных поверхностно-активных примесей. К сожалению, идентифицировать примесь и добиться случая чистой поверхности авторам не удалось, что делает невозможным количественные оценки и существенно затрудняет интерпретацию полученных результатов. В теоретическом исследовании [110] реальное описание адсорбированного слоя было заменено упрощенной моделью, в которой свободной поверхности приписывались неньютоновские реологические свойства. В целом, подбор реологической модели позволил добиться качественного воспроизведения эффектов, наблюдаемых в эксперименте.

Наиболее последовательное теоретическое исследование вопросов развития поверхностного течения, вызванного капиллярными силами, на поверхности жидкости, содержащей ПАВ, было сделано в цикле работ Хомси [111, 112]. В двумерной постановке исследованы возникновение и структура термокапиллярного течения при наличии молекул нерастворимого сурфактанта на поверхности жидкости. Показано, что структура результирующего течения определяется величиной двух безразмерных параметров: параметра эластичности

$$E = \frac{\Delta\sigma_T}{\Delta\sigma_G}, \quad (3.2)$$

показывающего отношение приращений поверхностного натяжения за счет концентрационного и температурного механизмов, и поверхностного числа Пекле

$$Pe_s = \frac{\gamma_T \Delta T l}{\eta D_s}, \quad (3.3)$$

(здесь γ_T – температурный коэффициент поверхностного натяжения, ΔT – разность температур вдоль слоя с характерным горизонтальным размером поверхности l , D_s – коэффициент поверхностной диффузии сурфактанта), характеризующего отношение массопереноса сурфактанта термокапиллярным течением и поверхностной диффузией. При $E > 1$ касательные напряжения, обусловленные термокапиллярным и концентрационным механизмами, уравниваются друг друга в каждой точке поверхности. На границе устанавливается почти равномерное движение, уравнивающее размытие градиента концентрации ПАВ за счет его поверхностной диффузии. При малых числах Пекле (быстрая диффузия ПАВ) распределение сурфактанта при существенной скорости на поверхности почти однородное. Для больших чисел Пекле (медленная диффузия ПАВ) поверхность становится практически неподвижной. В случае $E < 1$ у горячей стенки появляется участок поверхности, свободный от молекул сурфактанта, на котором развивается интенсивная термокапиллярная конвекция, собирающая весь сурфактант вблизи холодной стенки кюветы. В результате возникает застойная зона, положение границы которой существенно зависит от величины обоих безразмерных параметров. Экспериментов в такой постановке не проводилось.

Представленный выше обзор работ показывает отсутствие систематических экспериментальных исследований, направленных на изучение проблемы взаимодействия поверхностных течений с адсорбированным слоем сурфактанта. При наличии множества теоретических моделей экспериментально до сих пор не изучены вопросы развития течения, его структуры и устойчивости в связи с типом источника поверхностного движения и свойствами сурфактанта. В данном разделе представлены экспериментальные исследования, результаты которых позволяют ответить на большинство поставленных выше вопросов и представить систематизированную картину изучаемого явления.

Для изучения обозначенного выше круга вопросов была исследована задача о сосредоточенном источнике массы, расположенном на поверхно-

сти глубокого слоя жидкости, содержащей адсорбированный слой ПАВ. Выбор именно такой геометрии обусловлен несколькими причинами. Во-первых, в двух предыдущих разделах было показано, что конвективное течение в такой геометрии обладает самым большим потенциалом устойчивости. Во-вторых, в отличие от плоской геометрии в такой постановке отсутствуют боковые границы, наличие которых, как было показано выше, приводит к неравномерному профилю скорости поперек канала и, как следствие, к развитию вихревой структуры в пределах застойной зоны. С этой точки зрения именно цилиндрическая геометрия обеспечивает поверхностное течение, обладающее только дивергентной составляющей, что важно при изучении вопросов взаимодействия с поверхностной фазой, сформированной молекулами ПАВ.

3.1. Экспериментальная установка и методики измерений.

Основная сложность подготовки и проведения экспериментальных исследований гидродинамических систем, содержащих межфазную границу раздела жидкость-жидкость или жидкость-газ, состоит в создании «нулевой» поверхности, изначально свободной от неконтролируемых примесей, и поддержание ее чистоты в течение всего опыта. При изучении вопросов взаимодействия течения со специально добавленным ПАВ наличие «нулевой» поверхности является той точкой отсчета, относительно которой происходит создание слоев с заданными свойствами, что, в основном, и определяет воспроизводимость результатов. Именно по этой причине при изучении поверхностных явлений исследователи в большинстве случаев работают с границами раздела, имеющими малое поверхностное или межфазное натяжение. Когда одной из граничащих фаз является воздух, чаще всего используют органические жидкости (например, короткие алканы или спирты, кремний или фторорганические жидкости) с коэффициентом поверхностного натяжения 15 – 25 дин/см. В этом случае вероятность того, что среди случайных примесей найдется поверхностно-активная, намного меньше, что существенно снижает требования к подготовке и проведению эксперимента. Данный подход хорошо зарекомендовал себя при изучении

термокапиллярной конвекции. Однако такой выбор базовой жидкости в рассматриваемом в данном разделе случае не годится, так как это сильно ограничивает выбор ПАВ для такой поверхности. Но, даже если такое вещество найдено, поверхностная активность адсорбированного слоя будет небольшой и, следовательно, его влияние на поверхностные течения будет минимальным, что не позволит исследовать заявленные проблемы в широком диапазоне параметров. С этой точки зрения наиболее выгодной базовой жидкостью является вода, обладающая наибольшим из обычных жидкостей (исключая расплавы металлов и солей) поверхностным натяжением, что делает выбор сурфактантов практически неограниченным. В то же время, получение «нулевой» поверхности для воды является сложной задачей, требующей трудоемких процедур предварительной очистки как самой воды, так и контактирующих с ней деталей установки. В экспериментах использовалась вода высокой степени очистки, полученная в процессе трехступенчатой процедуры: предварительная тонкая фильтрация, деионизационные фильтры и бидистилляция. Этой же водой производилась финальная чистка контактирующих с водой деталей установки.

Схема экспериментальной установки представлена на Рис.3.1 Основным элементом является прозрачная цилиндрическая кювета 1 внутренним диаметром 18.0 см и высотой 6.0 см, стенки и дно которой изготовлены из стекла. Кювета устанавливалась в горизонтальном положении при помощи регулируемого столика (на схеме не показан). Вся конструкция была расположена на виброзащищенном основании. На подготовительном этапе кювета проходила многоступенчатую процедуру очистки, включающую обработку детергентом, ополаскивание проточной водой в течение 20-25 минут и финальное ополаскивание водой высокой степени очистки. Сразу после указанных процедур кювета заполнялась исследуемой жидкостью. Для удаления оставшихся примесей и примесей, попавших в воду из контактирующих деталей экспериментальной установки, применялась барьерная система и аспиратор. Для этого уровень воды устанавливался чуть выше края кюветы 2 (см. Рис.3.1а), сделанного из гидрофобного материала (фторопласт). На край кюветы клался барьер 3 прямоугольной формы из гидрофильного материала (полиацеталь). Благодаря такому

подбору пары материалов части поверхности воды по обе стороны от барьера оказывались изолированы друг от друга. При перемещении барьера все поверхностно-активные вещества, адсорбировавшиеся на границе раздела, оставались на передней, по ходу движения барьера, части поверхности, откуда удалялись при помощи aspirатора. Контроль чистоты водной поверхности производился также с помощью барьерной системы и высокочувствительных весов 4 с присоединенной к ним пластинкой Вильгельми 5. Поверхность считалась чистой, если при уменьшении площади на 90% за счет движения барьера изменение поверхностного натяжения, регистрируемое весами, составляло менее 0.2 дин/см, что сопоставимо с погрешностью прибора. После проведения процедур очистки поверхности граница раздела опускалась примерно до середины высоты боковых стенок (см. Рис.3.1б). Сверху кювета закрывалась стеклянной пластиной 9 для минимизации испарения и во избежание попадания загрязнений из окружающей среды.

В рассматриваемой серии экспериментов использовался концентрационно-капиллярный механизм создания поверхностного течения. Для этой цели через отверстие в центре дна кюветы заводилась тонкая (внешний диаметр 0.9 мм) стальная трубка 6, верхний срез которой располагался на глубине $H = 60$ мкм от поверхности. Ось симметрии трубки была строго перпендикулярна границе раздела. Противоположный конец трубки, выведенный за пределы кюветы, соединялся гибким шлангом с насосом 7, с помощью которого через стальную трубку подавался слабоконцентрированный (до 10% массовой концентрации) раствор этилового спирта. Массовый расход мог плавно меняться в пределах от $1.5 \cdot 10^{-3}$ г/с до $5.0 \cdot 10^{-2}$ г/с. Изменение концентрации C_{alc} раствора спирта и его массового расхода q позволяло в широких пределах менять мощность источника и, следовательно, интенсивность концентрационной конвекции Марангони.

В конце Главы 2 было показано, что такой источник ПАВ генерирует стационарное конвективное течение. С другой стороны, очень маленькие времена адсорбции и десорбции спирта $\sim 10^{-2}$ с, а также малый объем вносимого спирта по сравнению с объемом воды в кювете позволяет предполагать, что избыток молекул спирта на поверхности всегда будет

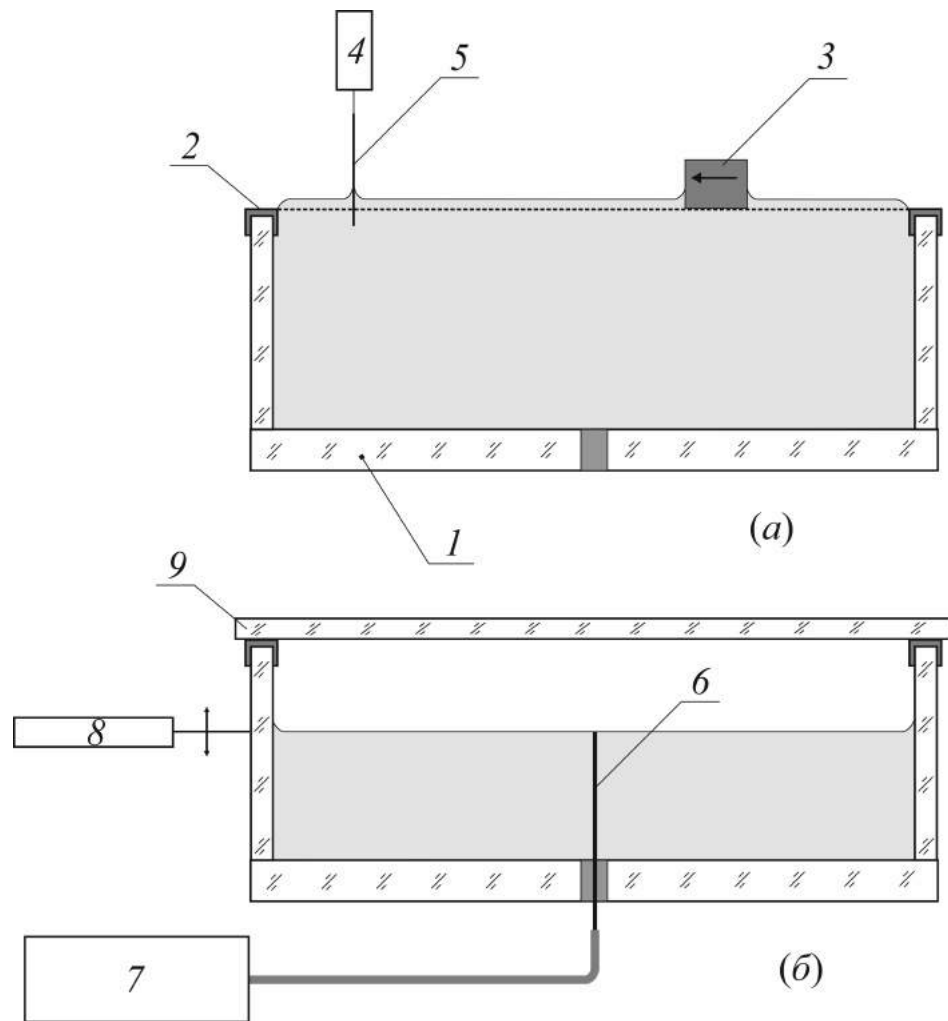


Рис. 3.1. Схема экспериментальной установки на этапах (а) финальной очистки свободной поверхности и (б) проведения основной серии экспериментов.

быстро уходить в объем. Это означает, что за характерное время, порядка нескольких минут, проведения эксперимента не будет происходить накопления молекул спирта на границе раздела и, следовательно, формирования отдельной поверхностной фазы с выделенными поверхностными свойствами. В такой ситуации для описания граничных условий на поверхности воды можно ограничиться упрощенными условиями, близкими по постановке к тепловому случаю. Учитывая данные особенности и то обстоятельство, что даже для самых коротких спиртов, метанола и этанола, концентрационная зависимость поверхностного натяжения воды остается намного больше температурной, такой источник массы можно рассматривать, как источник тепла очень большой интенсивности. Это дает важное преимущество перед

использованием источника тепла, позволяя менять интенсивность поверхностного течения в более широких пределах.

Для визуализации структуры конвективного течения в рабочую жидкость добавлялось небольшое количество светорассеивающих частиц – стеклянных пустотелых сфер нейтральной плавучести со средним размером 20 мкм. Частицы предварительно проходили многоступенчатую процедуру очистки, в ходе которой последовательно промывались ацетоном, изопропиловым спиртом и на последнем этапе водой высокой степени очистки. Световой нож, создаваемый с помощью лазера δ (длина волны 532 нм, мощность 200 мВт) и системы линз, проходил вдоль поверхности жидкости. Изображение регистрировалось камерой (НПК „Видеоскан“, Россия) с пространственным разрешением около 5 мкм/пикс. Экспозиция в зависимости от интенсивности течения варьировалась в пределах от 100 мкс до 10 с.

Были проведены три серии экспериментов с различными сурфактантами: одним нерастворимым и двумя растворимыми, являющимися членами одного гомологического ряда и существенно отличающимися поверхностной активностью и характерными временами адсорбционно-десорбционных процессов.

В качестве нерастворимого сурфактанта была использована олеиновая кислота (ЧДА, Merck). Свойства олеиновой кислоты хорошо изучены и представлены в научной литературе [84]. Данный сурфактант нерастворим в воде и способен формировать на ее поверхности слои только в двух фазовых состояниях – газообразном и жидко-расширенном. На Рис.3.2а представлена изотерма поверхностного давления, представляющая собой зависимость поверхностного давления π , создаваемого пленкой сурфактанта на поверхности субфазы, от относительной поверхностной плотности Γ/Γ_e , где $\Gamma_e = 0.714 \cdot 10^{-5}$ моль/м² - поверхностная плотность, соответствующая насыщенному монослою [84]. На Рис.3.2б более подробно представлен начальный участок изотермы, содержащий как данные из литературы [84], так и результаты измерений, проведенных автором диссертации. Штриховая линия соответствует аппроксимации экспериментальных данных кусочно-заданной функцией. Видно, что можно выделить два линейных участка,

существенно отличающихся скоростью изменения поверхностного давления с ростом поверхностной плотности. Участок $0 < \Gamma/\Gamma_e < 0.38$ соответствует газовому состоянию в поверхностной фазе. Небольшое значение величины $\partial\pi/\partial(\Gamma/\Gamma_e) \approx 0.5$ свидетельствует о хорошей сжимаемости слоя под действием приложенных касательных напряжений. Второй участок $\Gamma/\Gamma_e > 0.38$, характеризующийся плохой сжимаемостью слоя $\partial\pi/\partial(\Gamma/\Gamma_e) \approx 15$, соответствует жидко-расширенному фазовому состоянию.

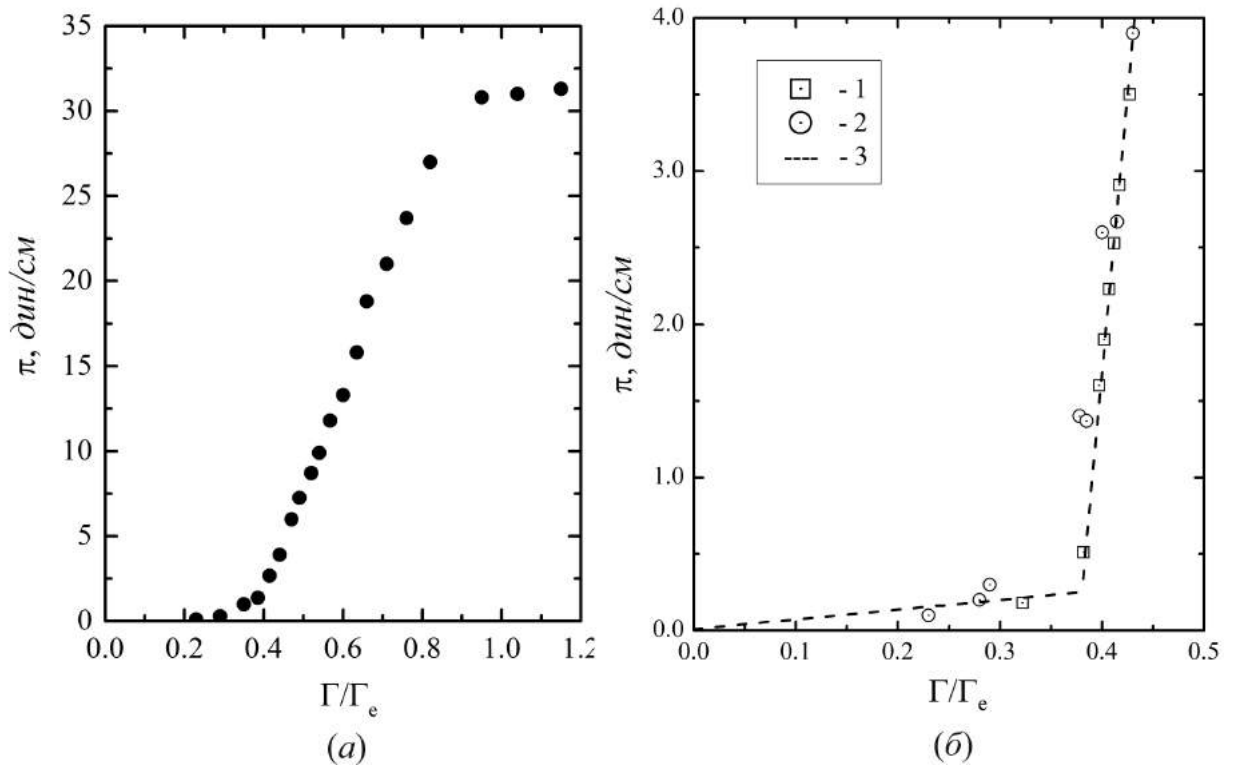


Рис. 3.2. (а) – изотерма поверхностного давления олеиновой кислоты. (б) – участок изотермы поверхностного давления олеиновой кислоты вблизи точки фазового перехода от газового к жидко-расширенному состоянию. 1 – результаты измерений, проведенных автором диссертации, (2) – результаты из [84], (3) – аппроксимация экспериментальных данных кусочно-заданной функцией.

Олеиновая кислота предварительно растворялась в гексане в объемной пропорции 1:10000. Небольшое количество (несколько микролитров) раствора наносилось на очищенную поверхность воды. После полного испарения гексана (меньше минуты), на границе раздела оставался слой мо-

лекул сурфактанта с поверхностной концентрацией Γ_0 , которая рассчитывалась, исходя из концентрации и объема наносимого раствора. Точное значение концентрации раствора определялось непосредственно перед опытом в лотке Ленгмюра. Для этого на очищенную поверхность водной субфазы наносилось известное количество раствора и, после испарения гексана, производилось сжатие поверхностной фазы барьерами. Поверхностное давление измерялось методом пластинки Вильгельми. Если рассчитанная по концентрации изотерма не совпадала с истинной изотермой, то производилась корректировка начальной концентрации. Изменения последней со временем были связаны с испарением растворителя, уход которого даже через притертую крышку невозможно было исключить. Было также проведено дополнительное исследование чистоты гексана. Маркировка «ЧДА» не исключает присутствия некоторого количества примеси, допустимого для целей химического анализа, но критичного при создании контролируемой по составу поверхностной фазы. При проведении такого исследования гексан наносился на очищенную поверхность воды, заполняющей лоток Ленгмюра. После полного испарения гексана поверхность сжималась барьерной системой, и измерялось поверхностное натяжение пластинкой Вильгельми. Измерения показали отсутствие изменения поверхностного натяжения к концу цикла сжатия, что говорит об отсутствии примесей, по крайней мере поверхностно-активных, в используемом гексане.

После создания слоя олеиновой кислоты включалась подача раствора через иглу. При фиксированной мощности источника и поверхностной концентрации сурфактанта производилось наблюдение структуры течения на поверхности.

В качестве растворимых сурфактантов были выбраны ацетат калия CH_3COOK и лаурат калия $CH_3(CH_2)_{10}COOK$, являющиеся членами одного гомологического ряда калиевых солей карбоновых (жирных) кислот – уксусной и лауриновой, соответственно. При одинаковой гидрофильной части молекулы данные вещества отличаются длиной гидрофобной части, что определяет существенные различия их физико-химических свойств. Как указывалось выше, увеличение вклада неполярной группы в ГЛБ приводит к уменьшению растворимости сурфактанта в водной фазе и росту его по-

поверхностной активности. На Рис.3.3 приведены изотермы поверхностного натяжения для обоих выбранных веществ. Видно, что поверхностное натяжение убывает с ростом концентрации гораздо быстрее в растворе лаурата калия, что говорит о его большей поверхностной активности. При одинаковом содержании сурфактантов в объемной фазе поверхностное натяжение ниже в растворе лаурата калия. Концентрация, при которой начальный криволинейный участок изотермы переходит в прямую зависимость, соответствует формированию насыщенного монослоя молекул сурфактанта на границе раздела. Это легко видно из уравнения Гиббса 3.1. На прямолинейном участке

$$\frac{d\sigma}{d \ln C} = const,$$

из чего следует, что $\Gamma = \Gamma_e = const$ поверхностная концентрация достигает максимального значения и не меняется при дальнейшем увеличении объемной концентрации. Из Рис.3.3 видно, что для создания насыщенного монослоя требуется на два порядка меньшая объемная концентрация в растворе лаурата калия. Используя уравнение Гиббса можно также построить изотерму адсорбции, связывающей поверхностную и объемную концентрации. На Рис.3.4 приведены такие зависимости для обоих веществ. Видно, что, несмотря на существенные различия в поверхностной активности, сурфактанты достигают практически одинаковой поверхностной концентрации в насыщенном монослое. Это характерно для членов одного гомологического ряда, учитывая вертикальное расположение молекул в насыщенном монослое и тот факт, что при удлинении длины молекулы в ряду площадь ее поперечного сечения не меняется. Из Рис.3.3 видно, что при достижении некоторого значения объемной концентрации поверхностное натяжение перестает меняться. Это связано с достижением предельной растворимости вещества в растворе. При данной концентрации происходит фазовый переход второго рода, при котором в растворе начинают формироваться устойчивые конгломераты из молекул, называемые мицеллами. Концентрация, при которой это происходит, называется критической концентрацией мицеллообразования (ККМ). При дальнейшем увеличении концентрации дополнительные молекулы в растворе присоединяются к уже существующим

мицеллам или формируют новые. Объемная концентрация свободных молекул, не входящих в состав мицелл, при этом перестает меняться, что приводит к неизменному поверхностному натяжению. Из Рис.3.3 видно, что растворимость выбранных веществ различается на два порядка.

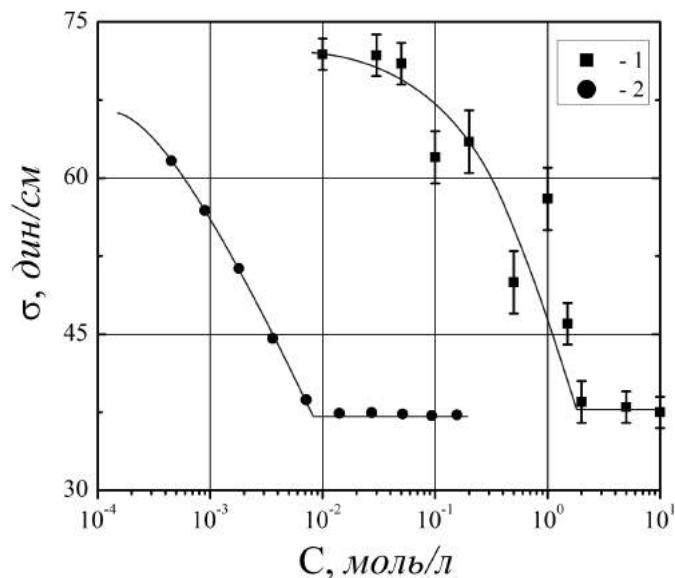


Рис. 3.3. Изотерма поверхностного натяжения (1) ацетата калия и (2) лаурата калия.

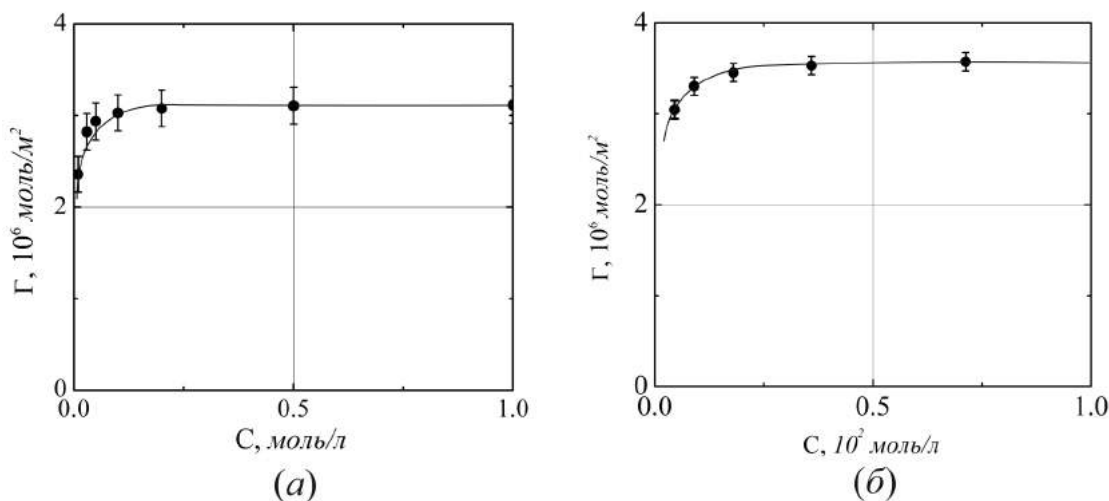


Рис. 3.4. Зависимость равновесной поверхностной плотности от объемной концентрации для (а) ацетата калия и (б) лаурата калия.

Разница в поверхностной активности обусловлена разной величиной работы, которую необходимо совершить для переноса молекулы сурфактанта между поверхностной и объемной фазами. По мере увеличения длины молекулы в гомологическом ряду работа увеличивается. Это приводит

к различию в скорости формирования поверхностного слоя при переходе системы из неравновесного состояния, вызванного, например, изменением площади поверхности раствора или изменением объемной концентрации. На Рис.3.5 приведены временные зависимости поверхностного натяжения растворов лаурата и ацетата калия. Растворы наливались в широкую чашку и поддерживались при фиксированной температуре. Изменение величины поверхностного натяжения со временем измерялось методом пластинки Вильгельми. Видно, что характерное время формирования равновесного поверхностного слоя, отличается для выбранных веществ. В случае лаурата калия такой слой формируется за времена порядка 10^2 с, тогда как в растворах ацетата калия для формирования равновесного слоя необходимо на два порядка большее время 10^4 с.

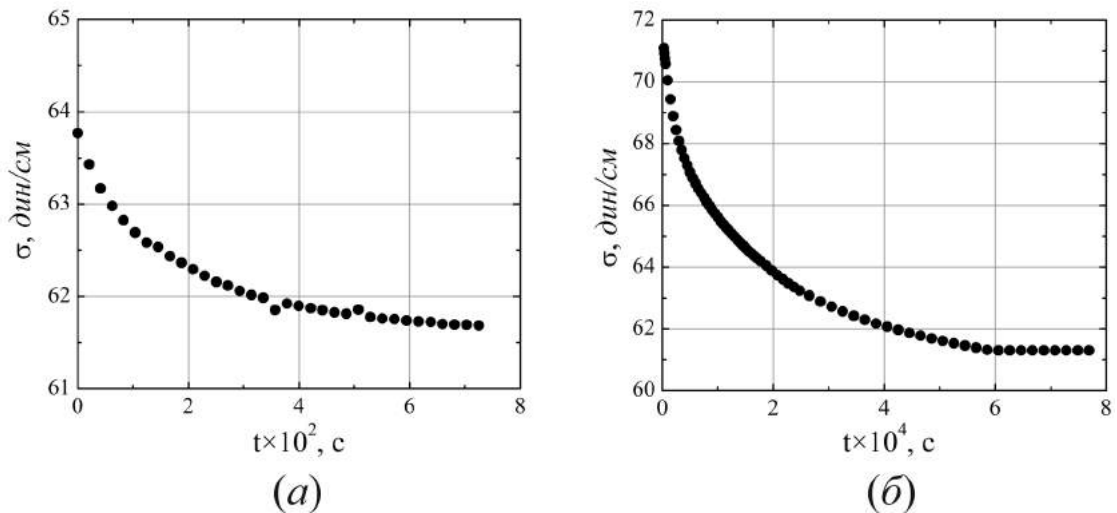


Рис. 3.5. Временная эволюция поверхностного натяжения к равновесному значению для (а) лаурата калия и (б) ацетата калия.

Таким образом, выбранные для исследования растворимые сурфактанты существенно отличаются как по способности изменять поверхностное натяжение, так и по динамике формирования поверхностной фазы. Сравнение основных свойств растворов использованных сурфактантов представлено в Таблице 3.1.

Растворы сурфактантов создавались на основе воды высокой степени очистки с добавлением гидроксида калия в одномольной концентрации. Добавление щелочи в раствор необходимо для предотвращения реакции гидролиза [113], протекание которой приводит к необратимому связыванию

Таблица 3.1. Некоторые физико-химические свойства водных растворов лаурата и ацетата калия. $C_{ККМ}$ – критическая концентрация мицеллообразования, Γ_e – поверхностная концентрация насыщенного монослоя, $d\sigma/dC$ – поверхностная активность, τ – характерное время формирования равновесного поверхностного слоя.

Вещество	$C_{ККМ}$, моль/л	$\Gamma_e \cdot 10^6$, моль/м ²	$d\sigma/dC \cdot 10^{-3}$, дин· л/ (см · моль)	τ , с
лаурат калия	0.010 ± 0.002	3.6 ± 0.1	1.06	$\sim 10^2$
ацетат калия	1.9 ± 0.1	3.1 ± 0.3	0.055	$\sim 10^4$

части сурфактанта в виде нерастворимого осадка. В результате объемная концентрация меняется со временем, что приводит к невоспроизводимости результатов. В начале эксперимента очищенная кювета заполнялась одно-мольным раствором калиевой щелочи, и производилась очистка поверхности по методике, аналогичной описанной выше для опытов с нерастворимым сурфактантом. Затем в раствор щелочи вносился растворимый ПАВ в количестве необходимом для получения нужной объемной концентрации сурфактанта во всей системе. После этого полученный раствор тщательно перемешивался непосредственно в кювете для гомогенизации смеси. После включения источника некоторой фиксированной мощности производилось наблюдение структуры течения на поверхности раствора. Перед включением источника и сразу после его выключения измерялась величина поверхностного натяжения методом пластинки Вильгельми.

3.2. Результаты экспериментов.

3.2.1. Нерастворимый сурфактант.

Рассмотрим сначала наиболее простой случай нерастворимого сурфактанта, что позволяет избежать учета вопросов, связанных с адсорбционно-десорбционными процессами, характерными для растворимых ПАВ. В этом случае молекулы поверхностно-активной примеси находятся только в пределах поверхностной фазы, не проникая в объем жидко-

сти. Возникновение движения жидкости на границе раздела может привести лишь к перераспределению молекул в пределах поверхностной фазы, что может изменить локальную концентрацию, не меняя полного количества вещества на границе раздела.

Эксперименты показали, что структура концентрационно-капиллярного течения на границе раздела существенно зависит от массовой концентрации раствора этилового спирта C , массового расхода q и от поверхностной плотности олеиновой кислоты Γ/Γ_e . В отсутствие молекул сурфактанта на границе раздела формировалось радиальное осесимметричное течение (Рис.3.6а), устойчивое во всем доступном в эксперименте диапазоне интенсивностей конвективного течения. Существование такой структуры течения служило дополнительным критерием чистоты поверхности в начале каждого эксперимента. В случае любого отклонения течения от осевой симметрии на чистой поверхности (Рис.3.6б) эксперимент прерывался и проводилась повторная очистка воды и кюветы.

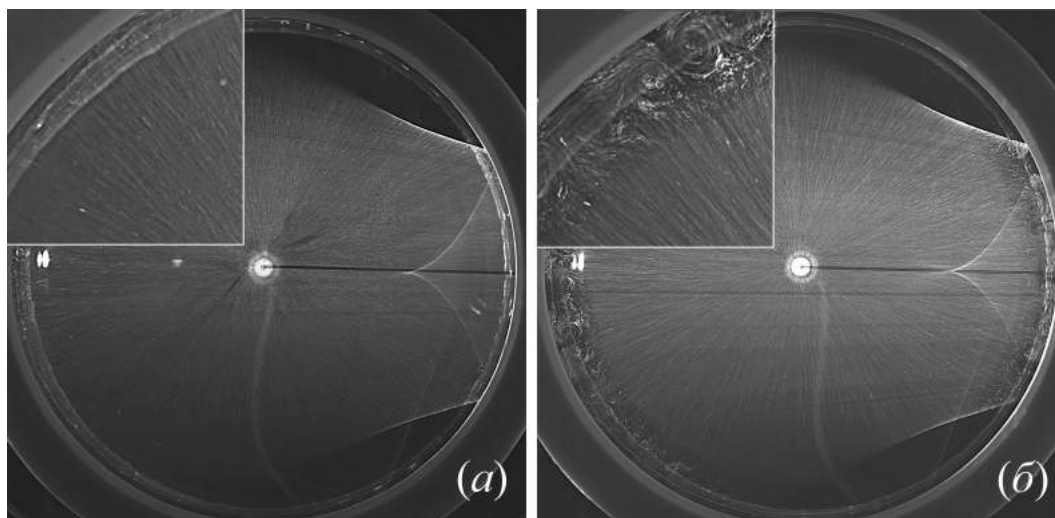


Рис. 3.6. Структура течения на поверхности жидкости, наблюдаемая в случае (а) чистой и (б) содержащей остаточные примеси границы раздела.

Нанесение адсорбированного слоя молекул сурфактанта в любой концентрации приводит к потере течением осевой симметрии. На границе раздела формируются две зоны с различной структурой течения (см. Рис.3.7а-в). В центральной части наблюдается осесимметричное радиальное течение, характеризующееся большими, от нескольких миллиметров до нескольких сантиметров в секунду, скоростями конвективного движения на

границе раздела. На периферийной части поверхности формируется многовихревая структура течения, периодичная в азимутальном направлении и характеризующаяся медленным, порядка долей миллиметра в секунду, движением жидкости на поверхности. Размер внутренней радиальной зоны и количество и расположение вихрей во внешней зоне зависят от интенсивности концентрационно-капиллярного течения и поверхностной плотности сурфактанта.

На Рис.3.7 представлены фотографии, иллюстрирующие изменение структуры течения на поверхности по мере увеличения количества сурфактанта, нанесенного на границу раздела, при неизменной концентрации и массовом расходе раствора спирта. При небольшой поверхностной концентрации сурфактанта (Рис.3.7а) зона радиального течения распространяется практически до краев кюветы. На периферии при этом формируется узкая зона вихревого движения, внутри которой расположены пары одинаковых вихрей. Увеличение поверхностной концентрации ведет к отодвиганию границ зоны радиального движения к центру кюветы (Рис.3.7а-в). Зона вихревого течения при этом увеличивается, что приводит к увеличению размера вихрей и уменьшению их количества. Наконец, при некотором содержании сурфактанта зона радиального течения полностью пропадает (Рис.3.7г). На всей поверхности остается только вихревое движение. Дальнейшее увеличение поверхностной концентрации приводит к уменьшению количества вихрей и их размеров (Рис.3.7г-д). При самых больших концентрациях два маленьких вихря остаются только в непосредственной близости от источника, в то время как на остальной поверхности движение практически отсутствует (Рис.3.7е). Аналогичная эволюция структуры течения наблюдается в том случае, если при неизменной поверхностной концентрации сурфактанта, уменьшать мощность источника.

На Рис.3.8а-в представлены зависимости размера зоны радиального течения от концентрации и расхода раствора спирта и от поверхностной концентрации сурфактанта. Видно, что по мере роста величины параметров, отвечающих за интенсивность концентрационно-капиллярного течения, радиальная протяженность центральной зоны увеличивается. И наоборот, увеличение содержания сурфактанта в слое при фиксированной

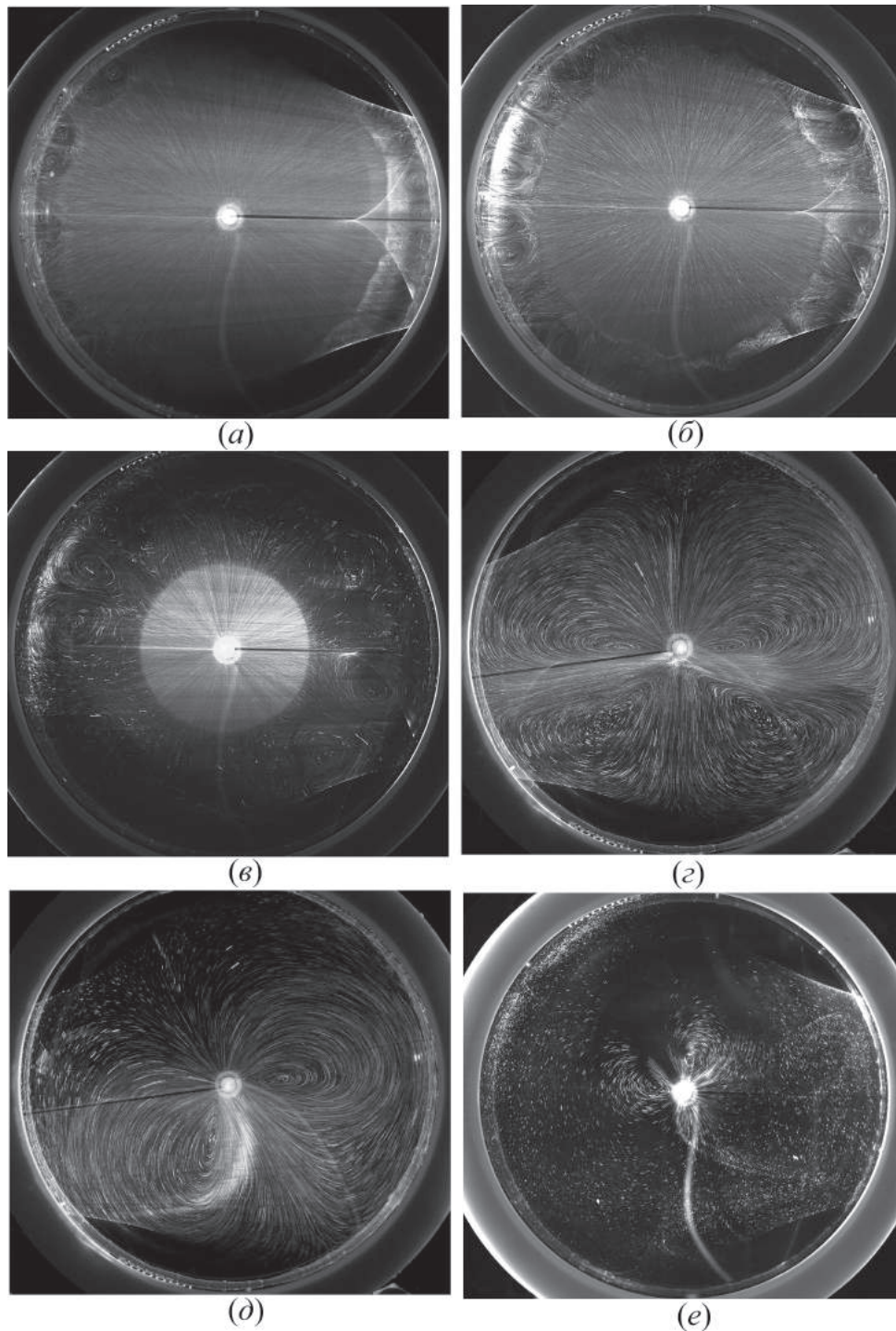


Рис. 3.7. Структура течения на поверхности воды при различной поверхностной концентрации олеиновой кислоты Γ/Γ_e : (а) – 0.075, (б) – 0.15, (в) – 0.225, (г) – 0.4, (д) – 0.5, (е) – 0.8. Параметры источника на всех изображениях постоянные $C_{alc} = 10\%$ и $q = 0.52 \cdot 10^{-2} \text{ г/с}$.

мощности источника приводит к быстрому уменьшению радиуса центральной зоны. При некотором критическом значении поверхностной плотности зона с радиальным течением пропадает. На Рис.3.8г-е приведены зависимо-

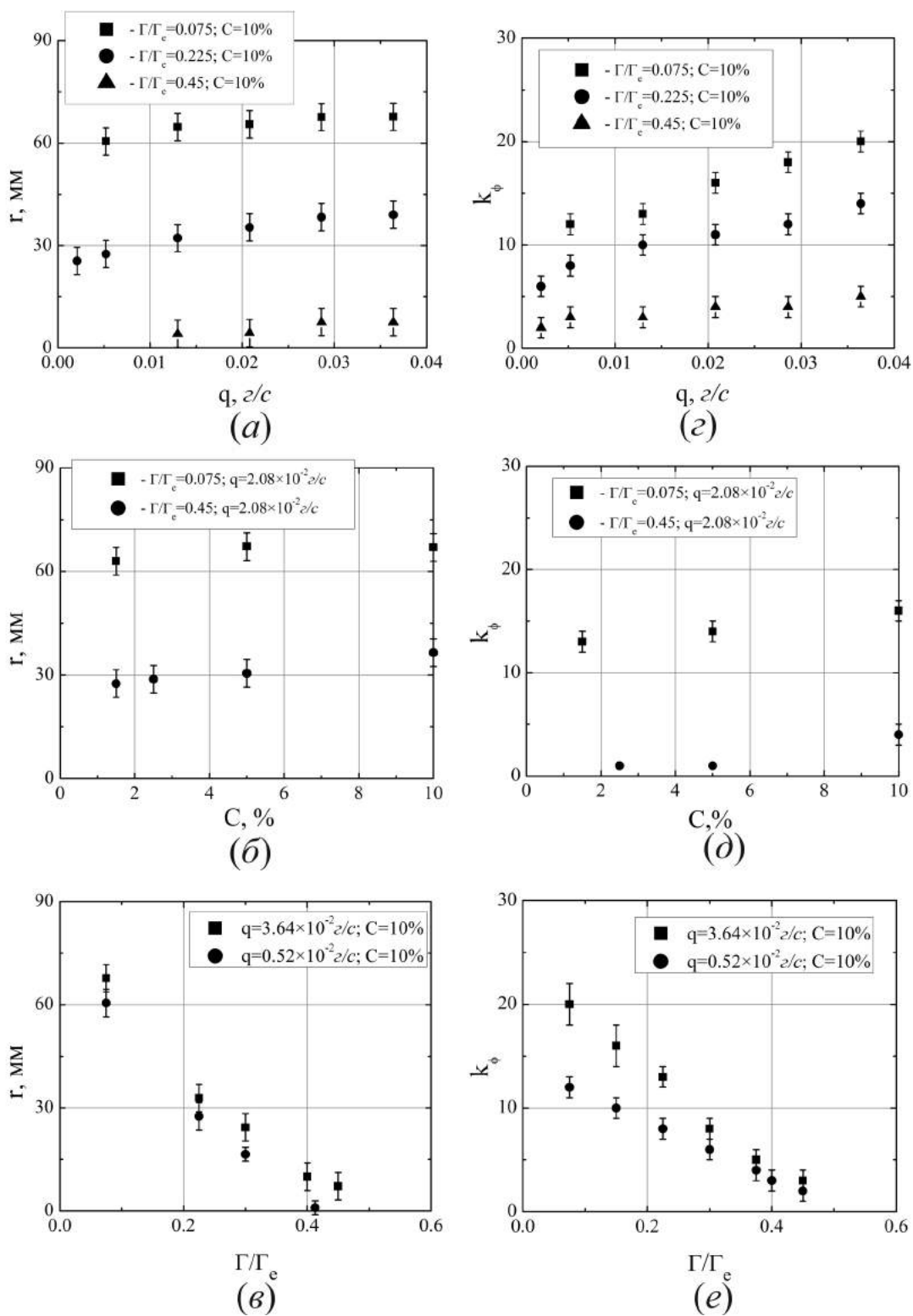


Рис. 3.8. Зависимости размера зоны радиального течения и азимутального волнового числа многовихревой структуры от (а) и (z) расхода раствора этилового спирта, (б) и (d) концентрации этилового спирта, (v) и (e) поверхностной концентрации олеиновой кислоты, соответственно. Параметры источника и поверхностного слоя указаны на графиках.

сти азимутального волнового числа вихревой структуры, численно равного количеству пар вихрей в азимутальном направлении, от параметров источника и количества сурфактанта, наносимого на поверхность. Поскольку обе характеристики течения (размер центральной и вихревой зон) связаны, что видно из анализа изображений на Рис.3.7, зависимости, представленные на Рис.3.8а-в и Рис.3.8г-е, коррелируют между собой: там, где имеется увеличение размера радиальной зоны от какого-либо параметра, наблюдается и рост количества вихрей.

3.2.2. Растворимый сурфактант.

Рассмотрим результаты наблюдений структуры концентрационно-капиллярного течения на поверхности раствора сурфактанта. Эксперименты показали, что от замены нерастворимого сурфактанта на растворимый качественно ничего не меняется. Так же, как и в первом случае, наличие молекул ПАВ на границе раздела приводит к формированию двух зон с различной структурой течения: зона радиального течения вокруг источника и зона вихревого течения, расположенная на периферии поверхности. Такая структура наблюдается даже при очень малом объемном содержании сурфактанта в системе.

На Рис.3.9 представлены трековые фотографии, иллюстрирующие эволюцию структуры течения от источника фиксированной мощности на поверхности раствора лаурата калия (Рис.3.9а-в) и ацетата калия (Рис.3.9г-е) по мере увеличения их объемной концентрации сурфактанта. Поскольку объемная и поверхностная концентрации связаны, то изображения отражают изменения структуры течения при увеличении поверхностной концентрации адсорбированного сурфактанта. Видно, что, подобно рассмотренному выше случаю нерастворимого ПАВ, рост содержания молекул сурфактанта в поверхностной фазе приводит к уменьшению размера радиальной зоны при одновременном увеличении размера зоны с вихревым движением жидкости на поверхности.

Несмотря на качественно схожие картины течения, имеются и существенные различия, связанные с эволюцией конвективного движения в начальный момент времени после включения источника. В случае нераство-

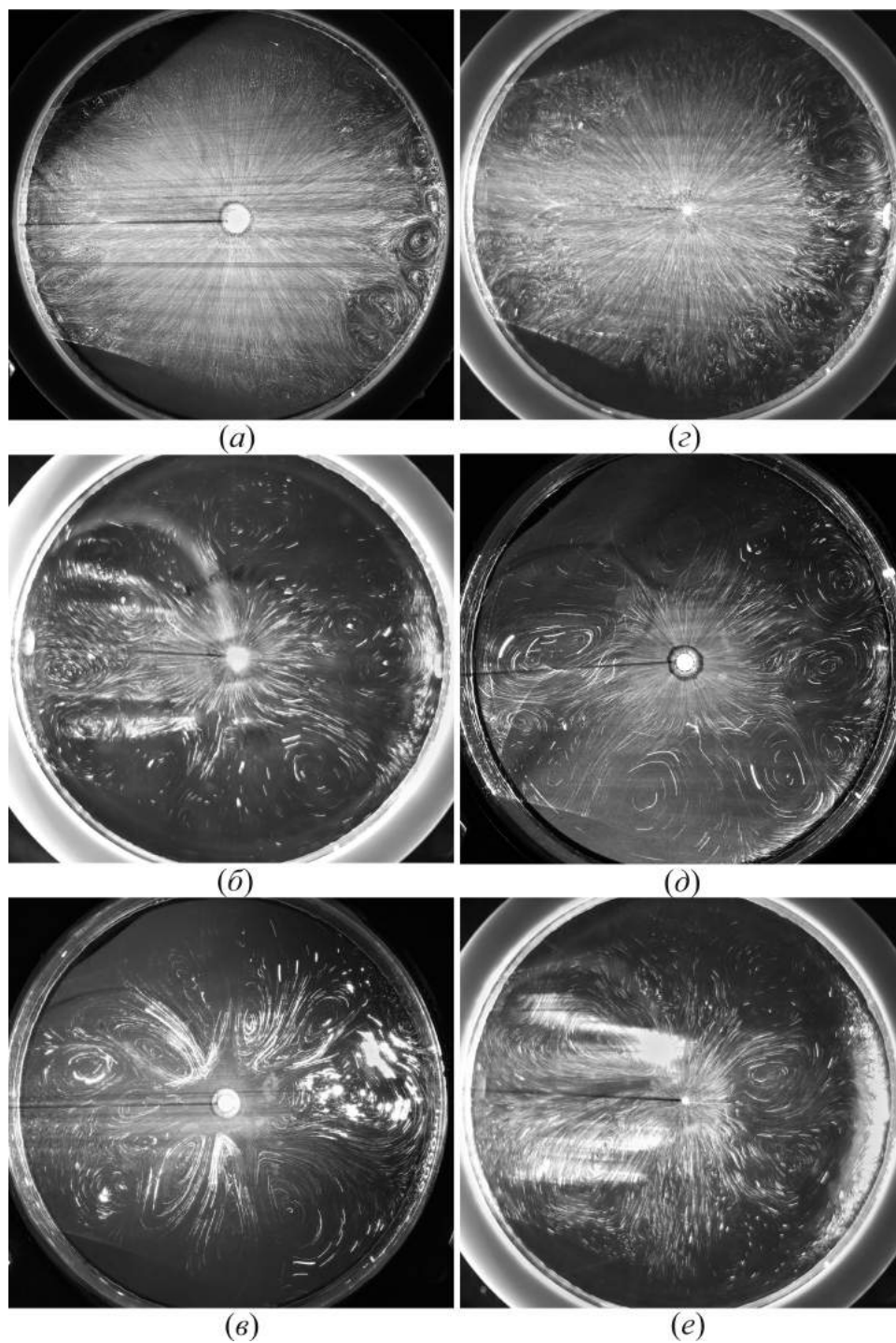


Рис. 3.9. Структура течения на поверхности раствора лаурата (а) – (в) и ацетата (г) – (е) калия при различной объемной концентрации сурфактанта C моль/л: (а) – $0.24 \cdot 10^{-4}$, (б) – $1.0 \cdot 10^{-4}$, (в) – $18.0 \cdot 10^{-4}$, (г) – 0.01, (д) – 0.5, (е) – 1.0. Параметры источника на всех изображениях постоянные $C_{alc} = 10\%$ и $q = 3.64 \cdot 10^{-2}$ г/с.

римого сурфактанта, стационарная структура течения устанавливается в течение нескольких секунд, необходимых для достижения баланса кас-

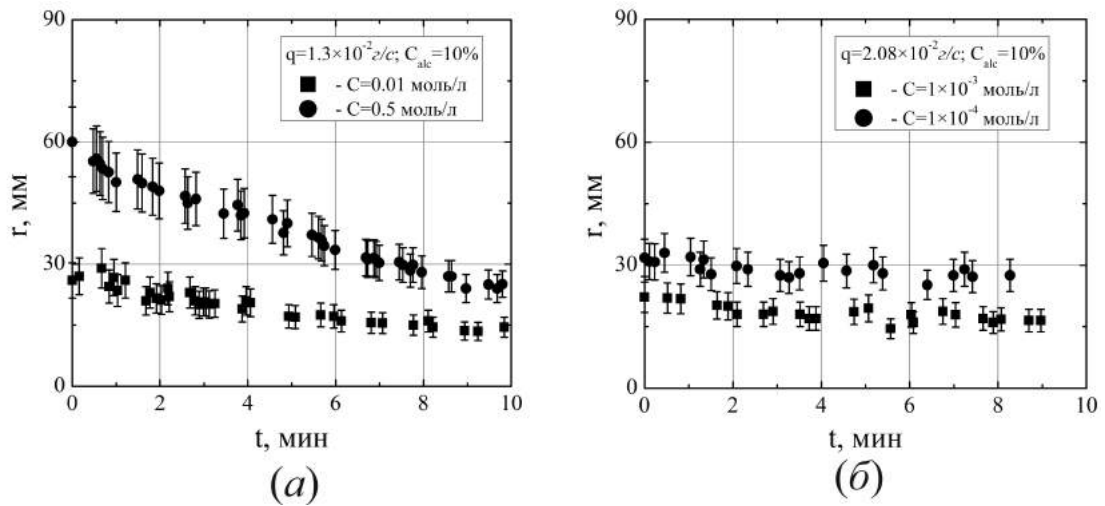


Рис. 3.10. Изменение радиуса радиальной зоны со временем в растворах (а) ацетата калия и (б) лурата калия. Параметры экспериментов указаны на графиках.

тельных напряжений на границе раздела. В растворах сурфактантов наблюдается более сложная временная эволюция. В течение первых нескольких секунд после включения источника, как и в случае нерастворимого сурфактанта, наблюдается быстрый рост размера радиальной зоны, который затем сменяется его медленным убыванием. На Рис.3.10 приведена временная зависимость размера радиальной зоны. На графиках показана только медленная убывающая часть зависимости, поскольку более быстрая первая часть не разрешается в интересующем нас временном масштабе. Видно, что для обоих сурфактантов характерно постепенное уменьшение радиуса зоны со временем, после чего устанавливается стационарная структура течения. У лаурата калия время выхода на равновесное значение составляет 4-6 минут, а сами изменения радиуса зоны не превышают 10-20% от первоначального размера. В растворе ацетата калия изменения наблюдаются в течение 8-10 минут и могут достигать 50% от начального значения.

Очевидно, что наличие переходного этапа в развитии конвективного течения при неизменной мощности источника обусловлено изменением поверхностной плотности сурфактанта в процессе адсорбционно-десорбционных процессов. Измерения поверхностного натяжения перед включением источника показывают, что граница раздела всегда недонасыщена молекулами сурфактанта. За время заливки и создания однород-

ного раствора перед началом эксперимента поверхностная фаза не успевает сформироваться (см. Рис.3.5). Особенно это заметно в растворах ацетата калия, где начальная величина поверхностного натяжения, в зависимости от объемной концентрации, мало отличается от чистой воды. Значения поверхностного натяжения, измеренные сразу после выключения источника после достижения стационара, лежат всегда ниже, что говорит об увеличении поверхностной концентрации. Таким образом, нестационарный начальный период, наблюдаемый для растворимых сурфактантов, есть отражение процесса формирования равновесного поверхностного слоя.

Интересно отметить, что время формирования равновесного поверхностного слоя, измеренное в конвективных условиях, резко контрастирует этим же самым временем, измеренным тензиометрическими методами в неподвижном слое раствора (см. Рис.3.5). В последнем случае характерные времена выхода на равновесное значение поверхностного натяжения составляли от нескольких сотен секунд для лаурата калия до десятков тысяч секунд для растворов ацетата калия. При наличии конвективного течения слой формируется гораздо быстрее (см. Рис.3.10).

Впервые влияние конвективного течения на скорость адсорбционно-десорбционных процессов было отмечено в работах Йоссе [114–118]. Анализируя динамику формирования поверхностной фазы в экспериментах, проводимых на барьерной системе Ленгмюра, он обратил внимание на то, что при образовании новой поверхности при раздвигании барьеров неизбежно должно возникать движение жидкости, при котором обеспечивается прямой конвективный перенос молекул сурфактанта в приповерхностный слой из объема жидкости. Учет введенного им конвективного слагаемого в уравнении массопереноса позволил впервые корректно описать результаты экспериментов, в которых использовались методы тензиометрии с существенным изменением площади поверхности. В работе [119] экспериментально было показано, что подобный конвективный механизм может привести к уменьшению времени достижения равновесия на поверхности как минимум на порядок.

Физический механизм такого влияния достаточно прост. Переход молекул на поверхность в процессе адсорбции приводит к заметному падению

концентрации в тонком приповерхностном слое. Как следствие, адсорбция замедляется до тех пор, пока не будет скомпенсирован недостаток вещества вблизи поверхности. Обратный переход молекул вследствие десорбции ведет, наоборот, к локальному повышению концентрации вблизи поверхности. Дальнейшая десорбция становится невозможной, пока избыток вещества не будет отведен от границы раздела. В неподвижной жидкости перенос молекул сурфактанта между приповерхностным слоем и более глубокими слоями жидкости происходит за счет диффузии, что определяет большие характерные времена формирования равновесного поверхностного слоя. При наличии движения жидкости перенос молекул осуществляется также конвективным механизмом массопереноса. В этом плане поверхностные течения, термокапиллярной и концентрационно-капиллярной природы, наиболее эффективны. Действительно, такие типы течения характеризуются, как правило, большими градиентами касательной скорости вблизи поверхности. Это означает высокую плотность линий тока, пришедших из различных частей объема жидкости, в очень узком приповерхностном слое, внутри которого и происходит основной массообмен между объемной и поверхностной фазами. Постоянное обновление приповерхностного слоя за счет конвективного массопереноса и является тем самым механизмом, приводящим к наблюдаемому в экспериментах ускоренному формированию равновесного поверхностного слоя.

Несмотря на наличие относительно длительного переходного начального этапа, в течение которого происходит установление равновесного распределения сурфактанта в системе и, следовательно, стационарного конвективного течения, зависимости характеристик установившегося течения от управляющих параметров подобны, полученным в случае нерастворимого сурфактанта. На Рис.3.11 представлены зависимости размера радиальной зоны и азимутального волнового числа вихревой структуры, наблюдаемые на поверхности раствора лаурата калия, от концентрации этилового спирта, расхода через источник и концентрации сурфактанта в водном растворе. Аналогичные зависимости для растворов ацетата калия приведены на Рис.3.12. Как и в экспериментах с нерастворимым сурфактантом, увеличение мощности источника ведет к росту центральной зоны и азиму-

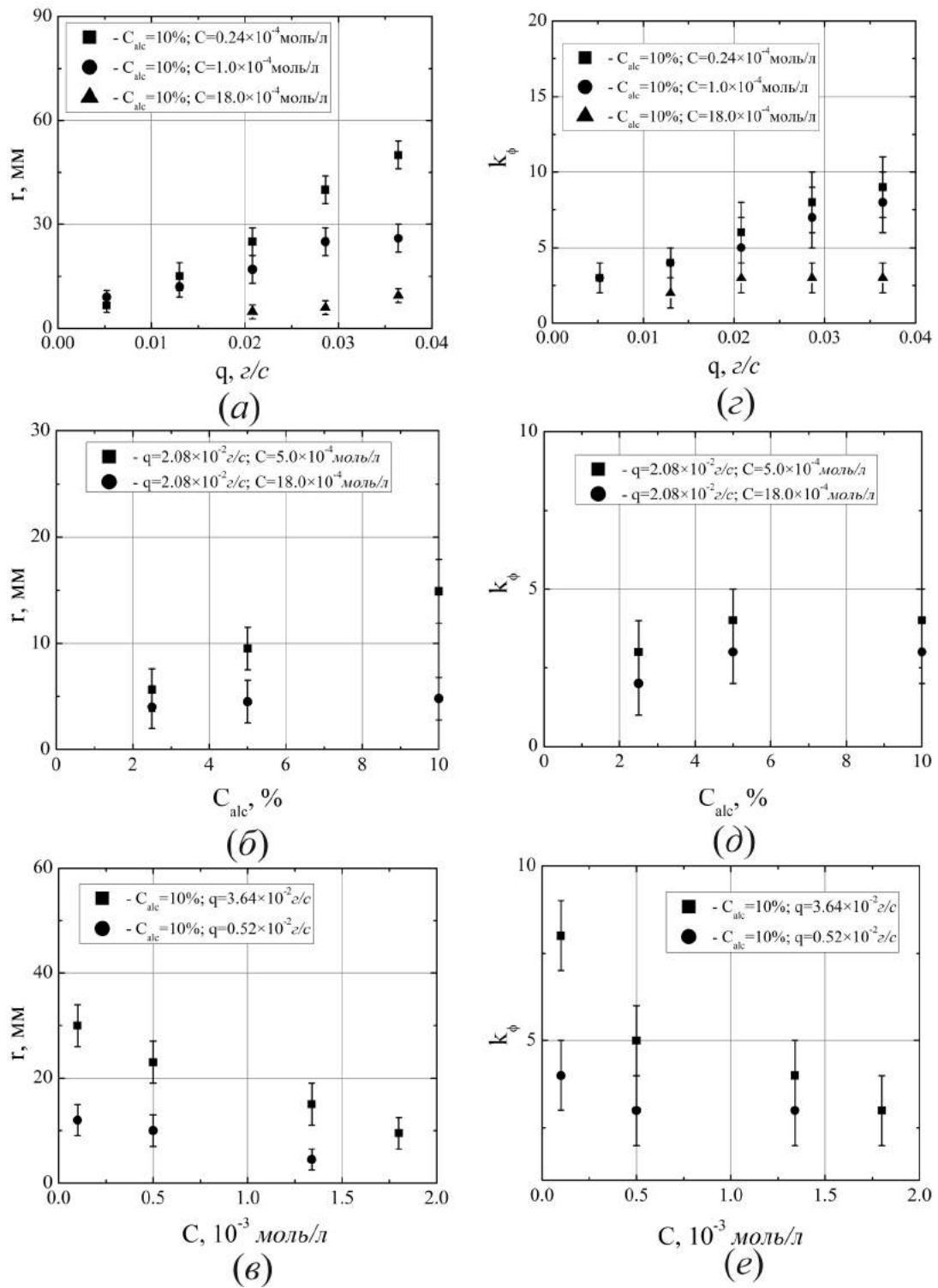


Рис. 3.11. Зависимости размера зоны радиального течения и азимутально-волнового числа многовихревой структуры от (а) и (г) расхода раствора этилового спирта, (б) и (д) концентрации этилового спирта, (в) и (е) объемной концентрации лаурата калия. Параметры экспериментов указаны на графиках.

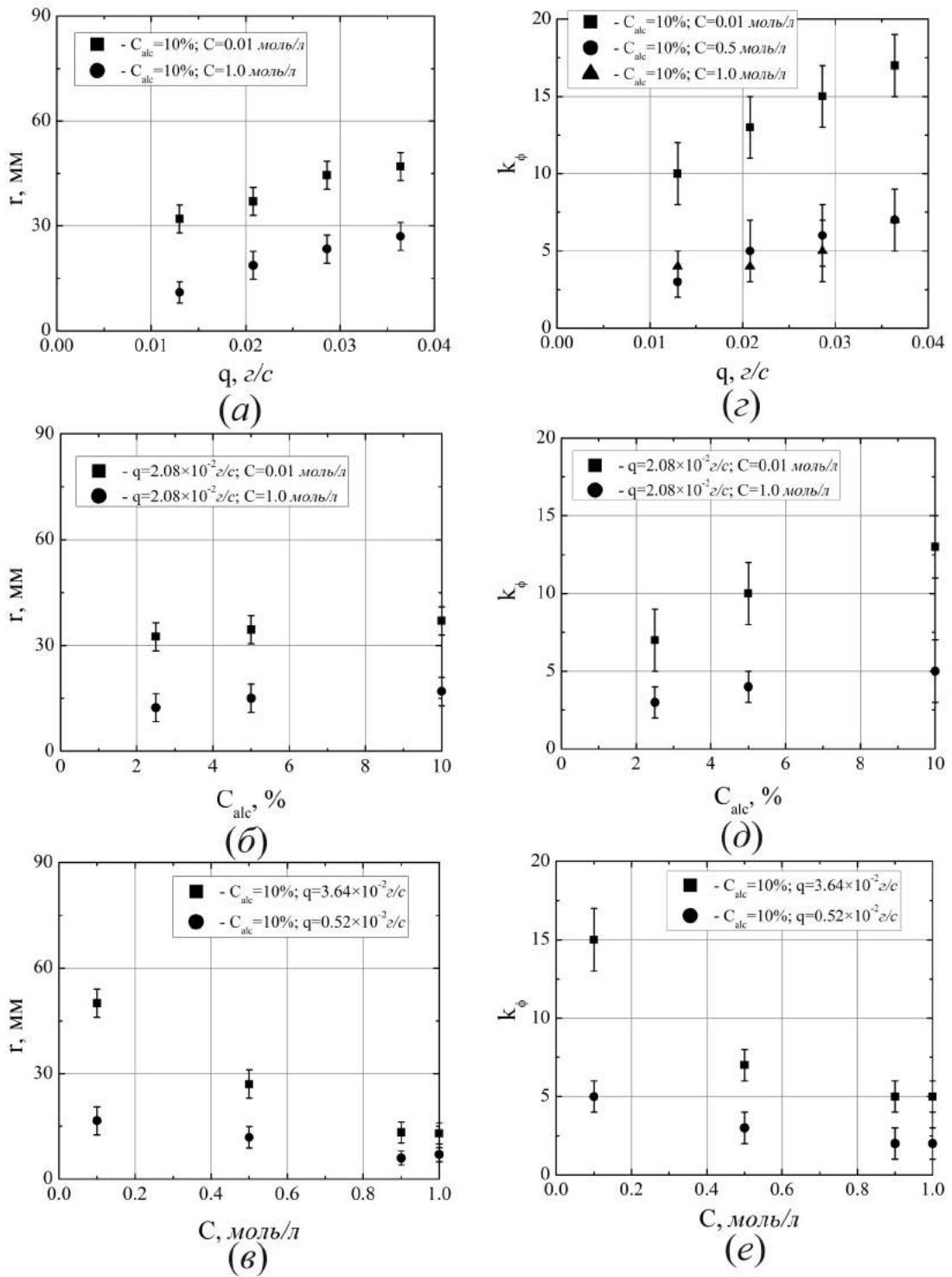


Рис. 3.12. Зависимости размера зоны радиального течения и азимутально-го волнового числа многовихревой структуры от (а) и (с) расхода раствора этилового спирта, (б) и (д) концентрации этилового спирта, (е) и (е) объемной концентрации ацетата калия. Параметры экспериментов указаны на графиках.

тального волнового числа вихревой структуры. Увеличение же содержания сурфактанта в системе ведет, напротив, к уменьшению перечисленных параметров.

3.3. Обсуждение результатов исследования.

Обсудим физические механизмы, приводящие к формированию наблюдаемой в экспериментах структуры течения. Наличие источника в центре кюветы инициирует движение жидкости на границе раздела, что приводит к конвективному переносу молекул сурфактанта, содержащихся на поверхности, в периферийную область. В результате, в центральной части, где поверхность оказывается свободной от молекул ПАВ, развивается интенсивное концентрационно-капиллярное течение, характеризующееся, в соответствии с выбранной геометрией, наличием только радиальной составляющей скорости. Оттеснение сурфактанта будет продолжаться до тех пор, пока поверхностное давление в сжатой пленке не скомпенсирует действие со стороны течения. Во внешнюю область поверхности, занятую сурфактантом, концентрационно-капиллярное течение не проникает.

Здесь следует заметить, что механизм формирования застойной зоны в рассмотренных выше ситуациях отличается. В случае нерастворимого сурфактанта, количество которого на поверхности сохраняется неизменным в течение опыта, застойная зона формируется простым оттеснением всего имеющегося ПАВ к периферии.

В случае растворимого сурфактанта его количество на поверхности не сохраняется, так как формирование застойной зоны сопровождается адсорбционно-десорбционными процессами. Сжатие слоя и связанный с ним рост поверхностной концентрации усиливает в застойной зоне процесс десорбции, уводящий излишки молекул сурфактанта в объем. С другой стороны, недостаток молекул ПАВ в центральной части поверхности приводит к превалированию адсорбционного процесса в конвективной зоне. В результате, на границе раздела в радиальном направлении устанавливается «молекулярный конвейер»: молекулы сурфактанта адсорбируются в конвективной зоне, переносятся течением к застойной зоне, где затем де-

сорбируются обратно в объем. Стационарное количество ПАВ в пределах застойной зоны будет результатом динамического равновесия между скоростью подвода вещества абсорбцией и конвективным переносом в центральной зоне и скоростью отвода вещества процессом десорбции. Равновесное содержание ПАВ в слое будет также зависеть от объемной концентрации сурфактанта, поскольку она определяет скорость адсорбционного процесса.

Несмотря на упомянутые различия в переходных процессах, установившееся положение границы между конвективной и застойной зоной определяется балансом давления со стороны течения, зависящего от мощности источника (концентрация и расход раствора спирта), и поверхностного давления со стороны слоя сурфактанта, определяемого поверхностной плотностью. В такой ситуации повышение поверхностной концентрации за счет большего начального содержания в случае нерастворимого сурфактанта или его большей объемной концентрации в случае растворимого сурфактанта должно приводить к росту давления со стороны слоя и, следовательно, уменьшению размера конвективной зоны, что и наблюдается в эксперименте. Если изначальное давление в слое сурфактанта больше, чем встречное действие со стороны источника, то конвективная зона не сформируется, что также наблюдалось в опытах для обоих типов сурфактанта.

В упомянутых во введении к данной главе работах Хомси [111, 112] для описания положения границы в термокапиллярном случае был введен параметр упругости (см. уравнение 3.2). Числитель данного соотношения $\Delta\sigma_{\Gamma} = \sigma_0 - \sigma(\Gamma_0)$ (здесь σ_0 и $\sigma(\Gamma_0)$ поверхностное натяжение чистой воды и воды с адсорбированным слоем сурфактанта с поверхностной концентрацией Γ_0) есть поверхностное давление в невозмущенном слое сурфактанта, а знаменатель – изменение поверхностного натяжения за счет присутствия источника тепла. Такой параметр отражает относительный вклад механизмов, определяющих как условия формирования конвективной зоны при достижении $E = 1$, так и положение границы между зонами в области $0 < E < 1$.

Поскольку механизм взаимодействия конвективного движения с адсорбированным слоем не зависит от способа создания поверхностного те-

чения, то параметр упругости может быть применен для описания полученных в данной главе результатов. Для этого его необходимо адаптировать к исследуемой ситуации. Суть модификации сводится к изменению вида знаменателя, который должен учитывать два механизма создания поверхностного течения от источника. Первый связан с наличием градиента концентрации спирта, а второй – с вязким увлечением поверхности жидкостью, вытекающей из иглы. Интенсивность первого из механизмов определяется разницей поверхностного натяжения воды и водного раствора спирта, вносимого на поверхность, $\Delta\sigma_c = \sigma_0 - \sigma(C_{alc})$. Данная величина, в зависимости от концентрации спирта, может меняться в пределах (3 – 23) дин/см. Второй из механизмов, обусловленный вязким увлечением, будет вносить основной вклад в интенсивность источника в момент формирования конвективной зоны. Поскольку при этом поверхность жидкости неподвижна, то ситуацию можно описать, как радиальное истечение жидкости в кольцевом зазоре, образованном твердыми границами. Роль нижней границы выполняет торцевая стенка иглы. Толщина такого зазора равна расстоянию H между поверхностью жидкости и срезом иглы, задаваемому в эксперименте. Распределение радиальной составляющей скорости поперек зазора [120, 121] описывается следующей формулой:

$$u_r(r, z) = \frac{3q_m}{\pi\rho H^3 r} \left(\frac{H^2}{16} - z^2 \right).$$

Касательное вязкое напряжение, прикладываемое к границе со стороны такого течения

$$\sigma_{rz} = \frac{4\eta u_{\max}}{H},$$

где

$$u_{\max} = \frac{3q_m}{16\pi\rho H r}$$

– максимальная скорость на профиле. Интегрируя по поверхности над иглой и деля полученную силу на длину периметра источника (иглы), получаем выражение для удельной силы вязкого трения

$$\tau = \frac{3\eta q_m}{4\pi\rho H^2}.$$

Данная величина, имеющая размерность дин/см, и есть искомая добавка в знаменателе параметра упругости. Для диапазона изменения массового расхода, применяемого в экспериментах, получаем величину добавки к мощности источника, связанную с вязким увлечением, в пределах (0.1 – 3.3) дин/см. Несмотря на то, что вклад вязкого механизма мал по сравнению с концентрационно-капиллярным, пренебречь при расчете мощности источника им нельзя.

Числитель в выражении для параметра упругости отражает поверхностное давление со стороны пленки сурфактанта. В случае нерастворимого ПАВ эта величина берется из изотермы поверхностного давления (см. Рис.3.2) для начальной концентрации Γ_0 . Тогда параметр упругости определяется, как

$$E = \frac{\pi(\Gamma_0)}{\Delta\sigma_c + \tau}.$$

В случае растворимого сурфактанта поверхностная плотность сурфактанта заранее не известна, так как поверхностная фаза формируется в процессе взаимодействия с конвективным течением, и должна быть измерена по факту. В качестве числителя в параметре упругости было использовано поверхностное давление $\pi = \sigma_0 - \sigma'$, где σ' – поверхностное натяжение раствора, измеренное пластинкой Вильгельми сразу после выключения источника. Таким образом, для растворимых сурфактантов параметр упругости определялся, как

$$E = \frac{\pi}{\Delta\sigma_c + \tau}.$$

В пользу корректности выбора безразмерного параметра для исследуемой проблемы говорят следующие факты. Во-первых, анализ результатов показал, что конвективная зона наблюдается только в случаях $E < 1$, т.е. когда суммарное воздействие со стороны источника способно сжать слой начальной поверхностной концентрации. При всех $E > 1$ конвективная зона не наблюдалась. Во-вторых, при равных значениях параметра

упругости, достигаемых при кратных изменениях мощности источника и поверхностного давления со стороны поверхностной фазы, наблюдались одинаковые размеры конвективной зоны. На Рис.3.13 представлены пары изображений, иллюстрирующие данное наблюдение.

На Рис.3.14 все экспериментальные результаты представлены в виде зависимости квадрата относительного размера конвективной зоны, показывающего степень сжатия слоя сурфактанта, от параметра упругости. Для удобства восприятия на графике не показаны погрешности. Для обеих величин относительная погрешность составляла, примерно, 10%. Видно, что данные образуют две группы, каждая из которых описывается своей зависимостью. Нижняя группа сформирована данными, полученными для нерастворимого сурфактанта, и хорошо описывается зависимостью типа $(r/R)^2 \sim E^{(-1.2 \pm 0.2)}$. Верхняя группа объединяет все данные, полученные в экспериментах с растворимыми сурфактантами. Здесь наилучшая аппроксимация $(r/R)^2 \sim E^{(-2.0 \pm 0.2)}$.

Объединение результатов экспериментов для растворов ацетата калия и лаурата калия говорит об одинаковой сжимаемости слоев обоих растворимых сурфактантов. На первый взгляд данный факт выглядит удивительным, учитывая столь существенную разницу в свойствах веществ. Однако, для понимания ситуации необходимо различать два процесса: формирование поверхностной фазы в результате адсорбционно-десорбционных процессов и сжатие сформировавшегося слоя под действием внешней силы. Разница в структуре амфифильной молекулы у разных сурфактантов определяет различие в скорости формирования поверхностной фазы. Однако, когда слой сформировался, его характеристики у разных веществ оказываются практически одинаковыми. Это заметно, например, из Рис.3.4. Несмотря на существенные различия в поверхностной активности, растворимости и скорости формирования равновесного адсорбированного слоя, оба сурфактанта достигают практически одинаковой поверхностной концентрации в насыщенном монослое. То же самое относится и к сжимаемости уже сформировавшегося слоя. В монографии Абрамзона [84] приводятся данные о величине $d\sigma/d\Gamma$ для более чем 50 растворимых сурфактантов в системах жидкость-жидкость и жидкость-газ. Несмотря на существен-

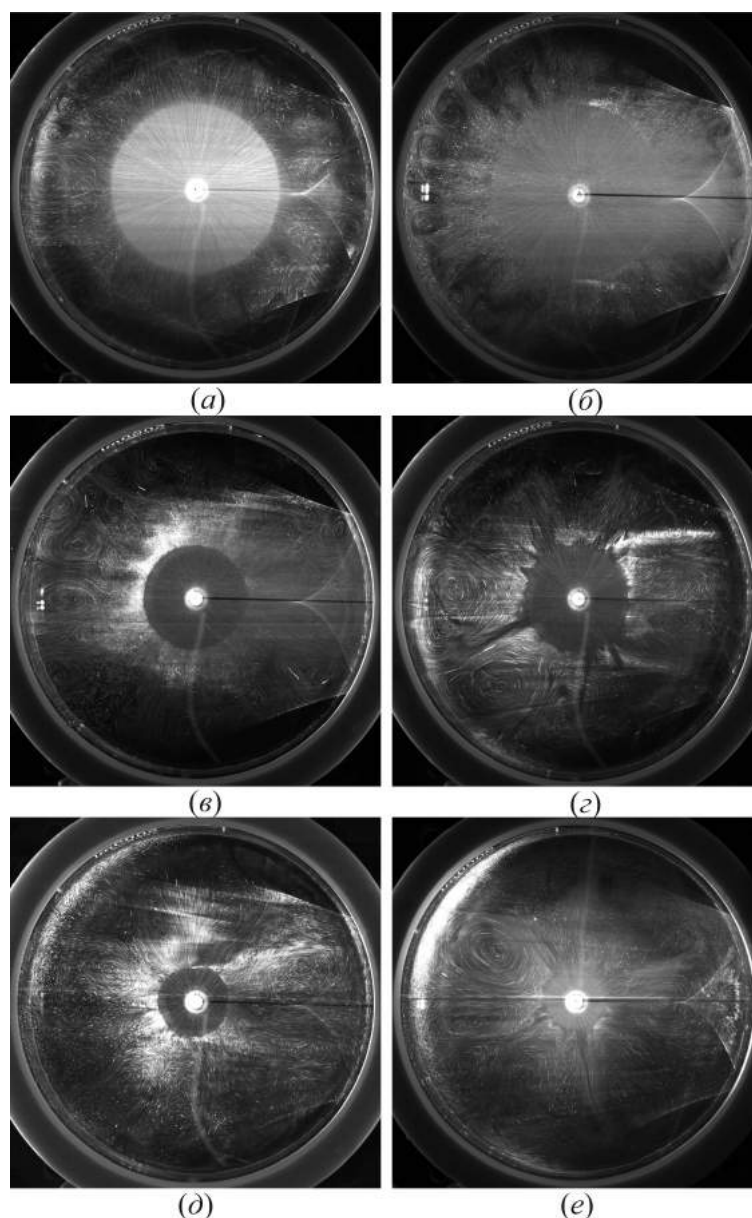


Рис. 3.13. Структура течения на поверхности воды, содержащей молекулы олеиновой кислоты, наблюдаемая при равных значениях параметра упругости, полученных при различных экспериментальных параметрах: $E = 6.0 \cdot 10^{-3}$ при (а) $\Gamma/\Gamma_0 = 0.075$; $q = 0.52 \cdot 10^{-2}$ г/с; $C_{alc} = 1.5\%$, (б) $\Gamma/\Gamma_0 = 0.225$; $q = 3.64 \cdot 10^{-2}$ г/с; $C_{alc} = 5\%$, $E = 4.0 \cdot 10^{-3}$ при (в) $\Gamma/\Gamma_0 = 0.3$; $q = 3.64 \cdot 10^{-2}$ г/с; $C_{alc} = 10.0\%$, (г) $\Gamma/\Gamma_0 = 0.225$; $q = 2.08 \cdot 10^{-2}$ г/с; $C_{alc} = 10\%$, $E = 10.3 \cdot 10^{-3}$ при (д) $\Gamma/\Gamma_0 = 0.3$; $q = 3.25 \cdot 10^{-2}$ г/с; $C_{alc} = 2.5\%$, (е) $\Gamma/\Gamma_0 = 0.2$; $q = 1.7 \cdot 10^{-2}$ г/с; $C_{alc} = 2.5\%$.

ные различия в структуре молекулы значения данного параметра близки для всех веществ и лежат в пределах $(3.0 - 4.5) \cdot 10^{10}$ дин·см·моль⁻¹, что говорит об их одинаковой сжимаемости под действием внешней силы.

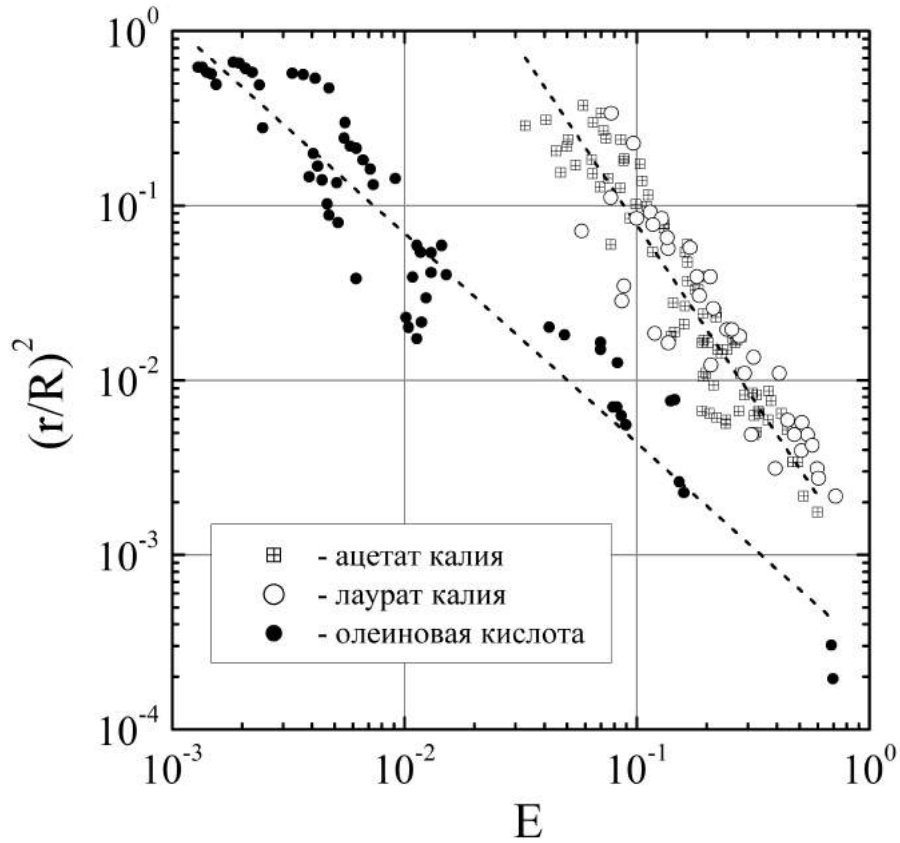


Рис. 3.14. Зависимость квадрата относительного размера конвективной зоны от величины параметра упругости для всех использованных сурфактантов.

Интересно также отметить, что данные для растворимых сурфактантов лежат выше на Рис.3.14, что говорит о лучшей сжимаемости слоя растворимого сурфактанта по сравнению с нерастворимым при одинаковом внешнем воздействии. Это хорошо известный в физической химии факт [84, 85]

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Gamma}\right)_{\text{нераств}} > \left(\frac{d\sigma}{d\Gamma}\right)_{\text{раств}}$$

Абрамзон объясняет это наличием у растворимых сурфактантов дополнительной степени свободы, связанной с возможностью перехода в объемную фазу и обратно. При этом на поверхности всегда имеется некоторое количество временно не занятых вакансий, вследствие чего слой всегда более разреженный, что и обуславливает его лучшую сжимаемость.

Таким образом, наблюдаемая в экспериментах двухзонная структура

течения на поверхности жидкости является результатом взаимодействия поверхностного течения и адсорбированного слоя ПАВ. Обсудим далее более интересный результат, связанный с формированием вихревого течения в застойной зоне. Наличие движения на поверхности в пределах застойной зоны выглядит неожиданно, так как по определению эта область поверхности характеризуется балансом встречных касательных напряжений, приложенных к границе раздела.

Для лучшего понимания процессов взаимодействия конвективного течения с поверхностной фазой были проведены дополнительные эксперименты. В первом из них, схема которого приведена на Рис.3.15, в объем жидкости помещался кольцевой барьер, расположенный соосно со стенками кюветы. Высота барьера выбиралась таким образом, чтобы между его верхним краем и свободной поверхностью оставался зазор около 1 мм. Наличие барьера позволяло отсекал часть объемного течения, не препятствуя распространению поверхностного. В первой части опыта (см. Рис.3.15а) мощность источника и поверхностная концентрация олеиновой кислоты выбирались таким образом, чтобы размер границы между зонами был равен размеру барьера. Структура течения представлена на Рис.3.15а. Видно, что в отсутствие течения под застойной зоной вихревое движение на ней не возникает. Во второй части опыта (см. Рис.3.15б) за счет уменьшения мощности источника или добавления сурфактанта на поверхность положение границы между зонами сдвигалось ближе к источнику так, что часть застойной зоны оказывалась внутри области, ограниченной барьером. Наблюдения показали, что в этой части застойной зоны развивается многовихревое движение. За пределами барьера, где объемное течение под поверхностью отсутствовало, вихри не формировались, несмотря на наличие общей поверхности.

Во втором из дополнительных экспериментов была реализована обратная ситуация. Кольцевой барьер подводился со стороны газовой фазы до касания с поверхностью (см. Рис.3.16). Такое расположение барьера позволяло разделить поверхность на две коаксиальные, не сообщающиеся между собой зоны при сохранении связанного объема жидкости. На внешнюю часть поверхности наносилось некоторое количество олеиновой

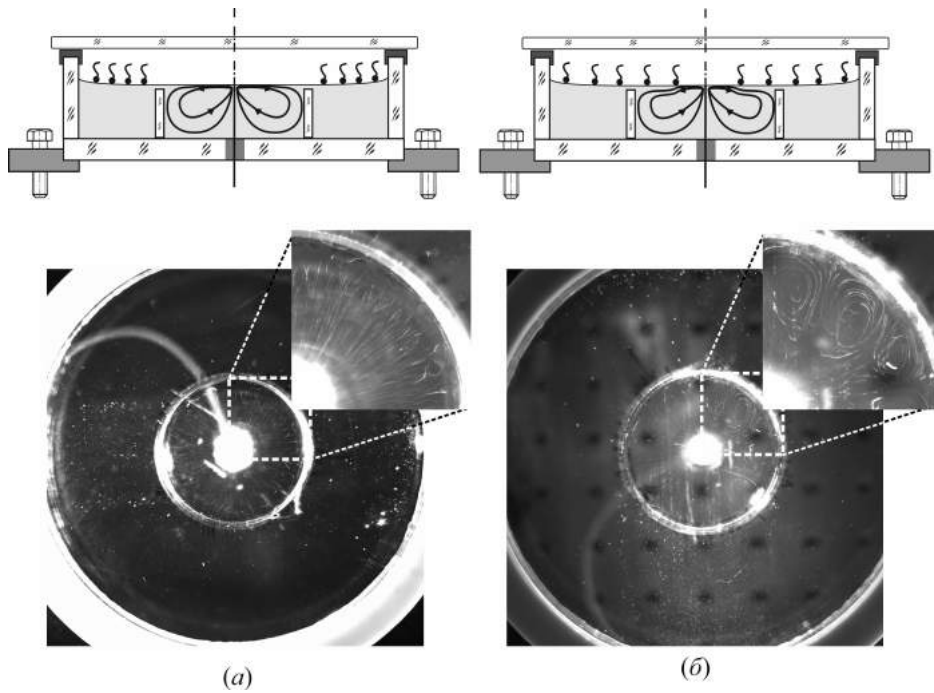


Рис. 3.15. Схема дополнительного эксперимента с преградой в объеме и наблюдаемая структура течения в случае, (а) когда вся застойная зона расположена за пределами барьера (б) и когда часть застойной зоны расположена внутри барьера.

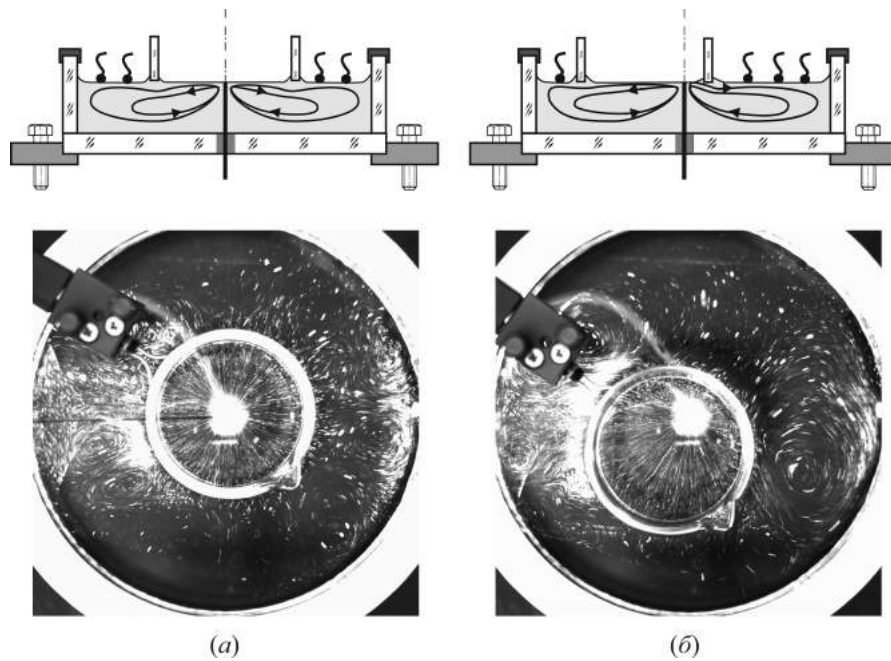


Рис. 3.16. Схема дополнительного эксперимента с преградой на поверхности и наблюдаемая структура течения в случае (а) соосного и (б) несоосного расположения источника внутри отгороженного участка поверхности.

кислоты, в то время как внутренняя поверхность оставалась свободной от сурфактанта. В такой ситуации барьер фактически навязывает положение границы между конвективной и застойной зонами. Структура поверхностного течения, наблюдаемая в такой постановке, приведена на Рис.3.16а. Видно, что проникновение объемного течения в область существования адсорбированного слоя приводит к формированию вихревого движения. При этом внутри вкладыша наблюдается радиальное течение, которое остается устойчивым даже при существенном нарушении соосности расположения барьера (Рис.3.16б). Зато такое нарушение симметрии оказывают существенное влияние на структуру вихревого течения на поверхности, занятой сурфактантом. В области, где расстояние от барьера до границы кюветы больше, наблюдается два больших вихря, в то время как с противоположной стороны возникает несколько вихрей меньшего размера. Эти наблюдения указывают на однозначную связь размера и числа вихрей с радиальным размером застойной зоны.

Третий, и последний, из дополнительных экспериментов проводился без добавления в систему сурфактанта. Застойная зона моделировалась тонкой прозрачной пленкой в форме кольца (см. Рис.3.17), лежащей на поверхности жидкости. Наблюдения показали наличие только радиальной составляющей скорости как на свободной поверхности, так и под твердой поверхностью пленки. Течение распространяется под твердой поверхностью, сохраняя радиальную структуру, и достаточно быстро затухает за счет диссипации кинетической энергии течения вязким механизмом. Вихревого движения в такой постановке не наблюдается.

Анализ результатов представленных выше дополнительных экспериментов убедительно показывает, что наблюдаемая в опытах вихревая структура движения возникает только при наличии объемного течения, распространяющегося под застойной зоной. Для понимания физического механизма взаимодействия объемной части течения с поверхностной фазой, необходимо подчеркнуть, что при переходе через границу между конвективной и застойной зонами происходит смена граничного условия на поверхности жидкости. На свободной от молекул сурфактанта поверхности выполняется условие проскальзывания. В застойной зоне вследствие ба-

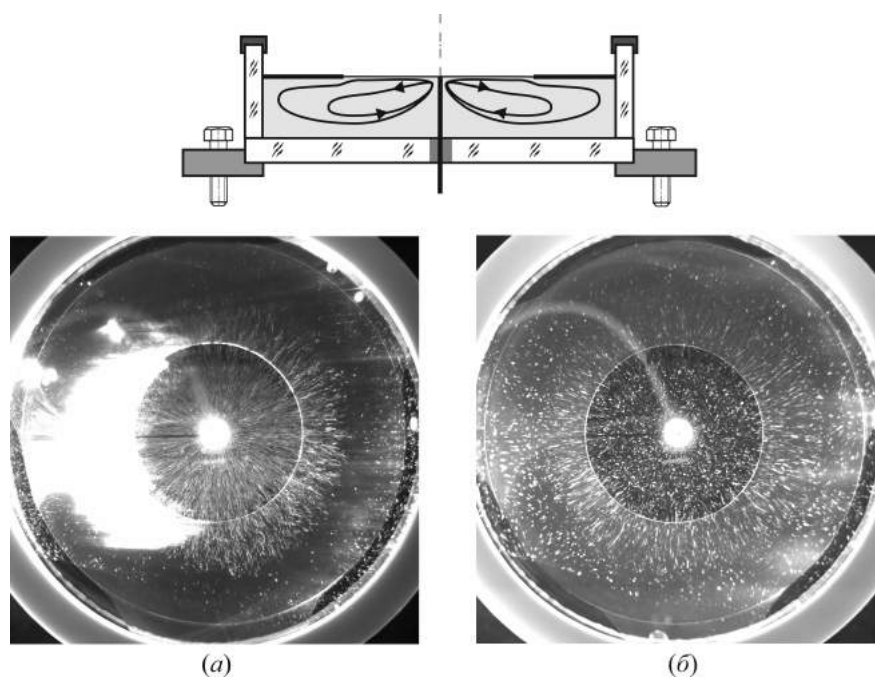


Рис. 3.17. Схема дополнительного эксперимента с пленкой на поверхности и наблюдаемая структура течения на глубине (а) 0.5 мм и (б) 5 мм под твердой поверхностью.

ланса касательных напряжений, обусловленных, с одной стороны, вязким увлечением поверхности радиальным течением и градиентом поверхностного натяжения за счет неоднородного распределения сурфактанта в сжатом течении поверхностном слое, с другой стороны, на границе раздела устанавливается нулевая скорость. Здесь необходимо отметить, что данное граничное условие справедливо лишь по отношению к движению жидкости, приводящему к сжатию слоя сурфактанта, т.е. к движению дивергентного типа. В рассматриваемой геометрии это чисто радиальное течение. С другой стороны, вихревое движение жидкости с осью вихря, перпендикулярной поверхности раздела, не приводит к перераспределению сурфактанта в поверхностном слое и, следовательно, может свободно распространяться вдоль границы раздела, не испытывая сопротивления. Таким образом, на поверхности жидкости, содержащей молекулы сурфактанта, выполняются достаточно непривычные для гидродинамики комбинированные граничные условия для скорости: для дивергентной (потенциальной) части течения справедливо условие прилипания, в то время как для вихревой его части выполняется условие проскальзывания. Такая асимметрия гра-

ничных условий приводит к различной скорости диссипации кинетической энергии движущейся жидкости за счет вязкого механизма. В общем случае, если конвективное течение имеет обе составляющие, следует ожидать перераспределения энергии потока от потенциальной части, как менее энергетически выгодной, к вихревой, что приведет к перестройке всего течения под поверхностью, содержащей слой сурфактанта. С этой точки зрения появление вихревой структуры в исследуемой в данном разделе задаче следует рассматривать, как проявление *неустойчивости радиального течения* в области застойной зоны. Случайно возникшее вихревое возмущение скорости будет усиливаться в силу указанной выше асимметрии граничного условия, что, в конечном итоге, приведет к появлению многовихревой структуры течения, наблюдаемой в эксперименте, как наиболее выгодной с энергетической точки зрения. Такой сценарий справедлив и для ситуации, когда параметр упругости больше единицы, и конвективная зона не может сформироваться. В этом случае вся поверхность жидкости является застойной зоной. Радиальное течение, возникающее в объеме вследствие истечения раствора из источника, также становится неустойчивым по отношению к вихревым возмущениям, что и наблюдается в эксперименте. Причем наличие спирта не является обязательным. На Рис.3.18 представлены изображения структуры течения для ситуации, когда из источника подается чистая вода. В этом случае касательные напряжения на поверхности создаются только вязким механизмом. Видно, что осесимметричное течение, наблюдающееся в отсутствие сурфактанта (см. Рис.3.18а), становится неустойчивым при его внесении на границу раздела (см. Рис.3.18б). Относительно слабый вязкий механизм не может сформировать конвективную зону, и вихревое течение развивается непосредственно вблизи источника. При величинах параметра упругости много больше единицы, т.е. относительно слабом источнике и большой поверхностной плотности сурфактанта в слое, вихревое течение не проникает далеко в радиальном направлении, развиваясь только вблизи источника (см. Рис.3.7е).

В ходе дополнительных экспериментов (см. Рис.3.16б) было показано, что характеристики вихревого движения определяются геометрическими размерами застойной зоны. На Рис.1.3.19 представлена зависимость ази-

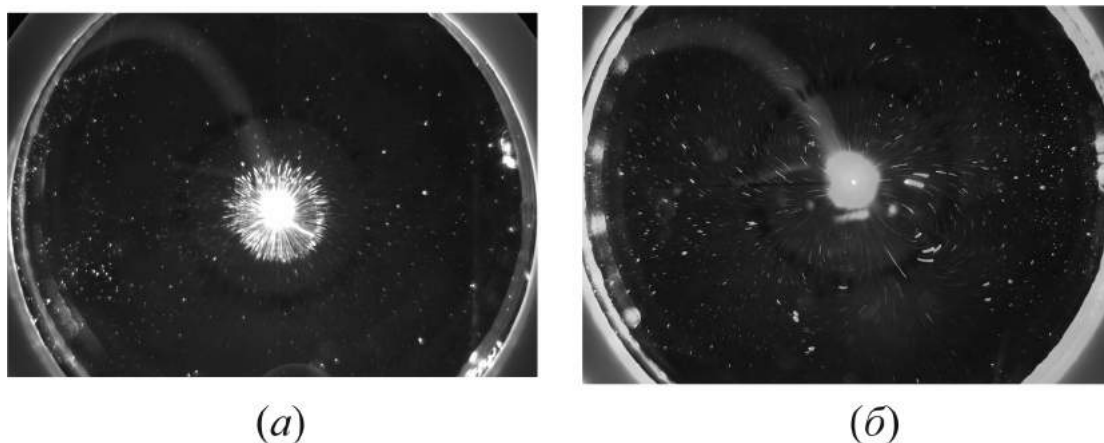


Рис. 3.18. Структура течения на чистой поверхности воды (а) и поверхности воды, содержащей слой молекул олеиновой кислоты, (б) в случае подачи из источника чистой воды.

мутального волнового числа вихревой структуры от относительного размера конвективной зоны. Видно, что вне зависимости от используемого сурфактанта, его содержания на поверхности и в объеме, а также мощности источника все экспериментальные данные описываются единой зависимостью. На этом же рисунке приведены две кривые, рассчитанные по формуле:

$$k_{\varphi} = \frac{\pi n(1+x)}{2(1-x)},$$

где $x = r/R$ – относительный размер конвективной зоны, $n = l_r/l_{\varphi}$ – отношение радиального и азимутального размеров вихря. Данная формула для азимутального волнового числа получена из условия расположения в азимутальном направлении целого количества пар вихрей, радиальный размер которых равен размеру застойной зоны. Видно, что при небольших размерах конвективной зоны экспериментальные данные лучше описываются кривой с $n = 2$, что соответствует вытянутым в радиальном направлении вихрям. Увеличение размера конвективной зоны ведет к формированию вихрей с примерно равным отношением размеров, соответствующем $n = 1$. Приведенный график показывает, что вихри устанавливаются в системе таким образом, чтобы полностью заполнить пространство застойной зоны, а их размер и количество определяются только размерами поверхности, предоставленной для их развития, и не зависят от параметров источника

или поверхностной фазы.

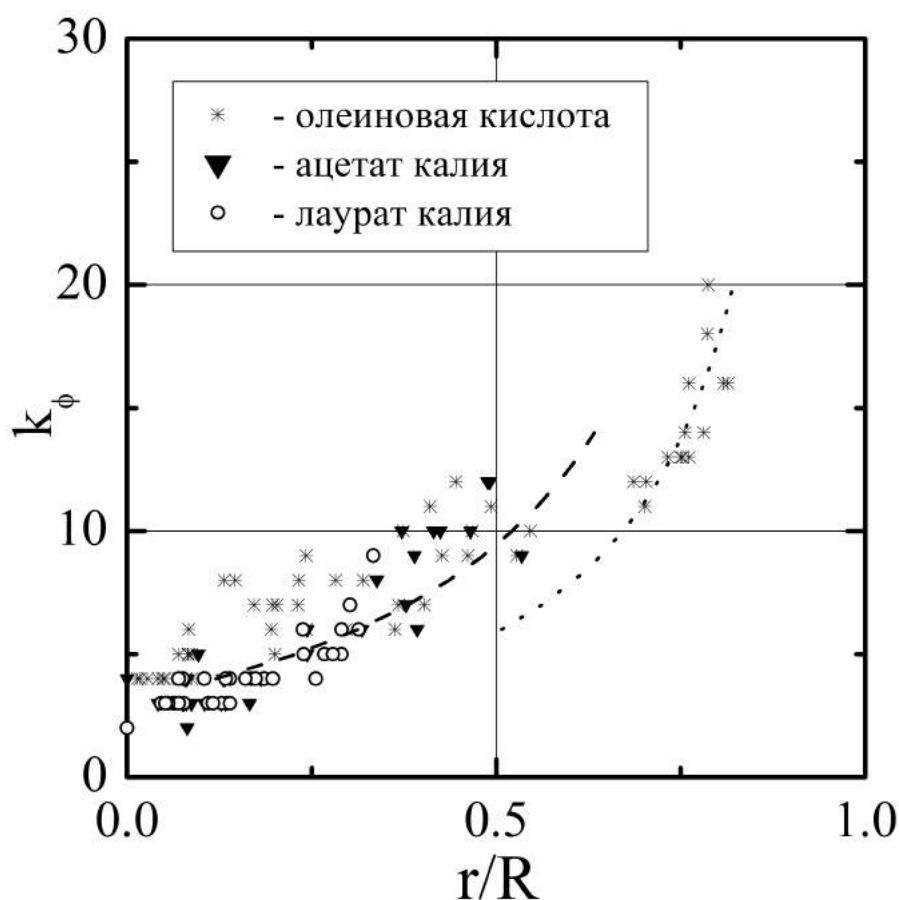


Рис. 3.19. Зависимость азимутального волнового числа k_ϕ вихревой структуры от относительного размера конвективной зоны r/R .

Представленные в главе результаты наглядно показывают, что изученное в Главе 1 и Главе 2 радиальное, осесимметричное течение, генерируемое сосредоточенным источником тепла или массы, становится абсолютно неустойчивым при наличии на поверхности раздела адсорбированного слоя молекул сурфактанта. Асимметрия граничного условия для скорости на поверхности жидкости для потенциальной и вихревой составляющих конвективного движения приводит к затуханию дивергентного течения и развитию многовихревого движения жидкости. Причем для этого механизма неустойчивости не важна ни природа формирования течения (тепловая или концентрационная конвекция Марангони, вязкое увлечение поверхности), ни его геометрия. Подобная рассмотренной ситуация наблюдалась в плоской постановке в упомянутой во введении работе Линде [95]. Одномерное течение на поверхности, увлекаемой плоским двумерным течением Куэтта

в широком канале, сменялось многовихревым после внесения нерастворимого сурфактанта на границу раздела. В более узких каналах [96, 99, 101] возникала только одна пара вихрей, что подтверждает сделанный выше вывод о зависимости размера и числа вихрей от геометрических размеров застойной зоны. На сферической поверхности каплей или пузырей также наблюдалось вихревое движение, обусловленное наличием сурфактанта [101, 122]. Более того, такого типа неустойчивости возможны в системах с «неклассическими» ПАВ. Так в работе [123] присутствие в расплаве галлия небольшого количества свинца, являющегося поверхностно-активным веществом в данной паре, приводило к формированию двухвихревого течения на поверхности. Аналогичные структуры течения на поверхности расплавов наблюдались в так называемых сварочных ваннах (welding pool), формирующихся в процессе газовой или лазерной резки металлов [124]. Здесь поверхностно-активными примесями выступают, как правило, кислород, сера или селен.

Таким образом, представленный механизм неустойчивости дивергентного течения по отношению к вихревым возмущениям является универсальным и может проявлять себя в различных системах, где имеется течение на поверхности, содержащей слой молекул ПАВ. Обнаружение вихревого движения на поверхности в ситуации, где постановка задачи не предполагает его появления, например, из соображений симметрии, должно являться причиной проверки экспериментальной установки или применяемой жидкости на наличие поверхностно-активных примесей.

С этой точки зрения интересно обсудить результаты нескольких экспериментальных исследований, в которых наблюдалась вихревая структура течения на границе раздела. Автором диссертации будет предложена иная интерпретация результатов, поскольку постановка экспериментов допускает наличие неконтролируемой исследователями поверхностно-активной примеси.

Схожая с рассмотренной в данной главе по постановке задача была экспериментально исследована в [125]. В этой работе на поверхность воды подавался раствор этилового спирта. Вместо осесимметричного радиального течения, предсказываемого теоретическими исследованиями [126, 127]

и вытекающего из соображений симметрии задачи, авторы обнаружили сложное многовихревое течение на поверхности. Эта экспериментальная работа инициировала появление ряда теоретических работ [128, 129], авторы которых предположили причину наблюдаемого расхождения в неустойчивости самого осесимметричного течения. Результаты исследований оказались довольно противоречивыми: от абсолютной неустойчивости осесимметричного течения [128] до наступления неустойчивости при некоторой конечной, но очень малой, мощности источника [129]. Анализ структуры течения, наблюдавшейся в указанном выше эксперименте, явно указывает на присутствие сурфактанта на поверхности воды. Основным его источником, скорее всего, являлись визуализирующие частицы, применяемые в экспериментах. Технология производства алюминиевой пудры предполагает наличие технических масел на поверхности частиц. Причем, судя по отсутствию конвективной зоны даже при максимальных мощностях источника, поверхностная концентрация сурфактанта в экспериментах была значительной.

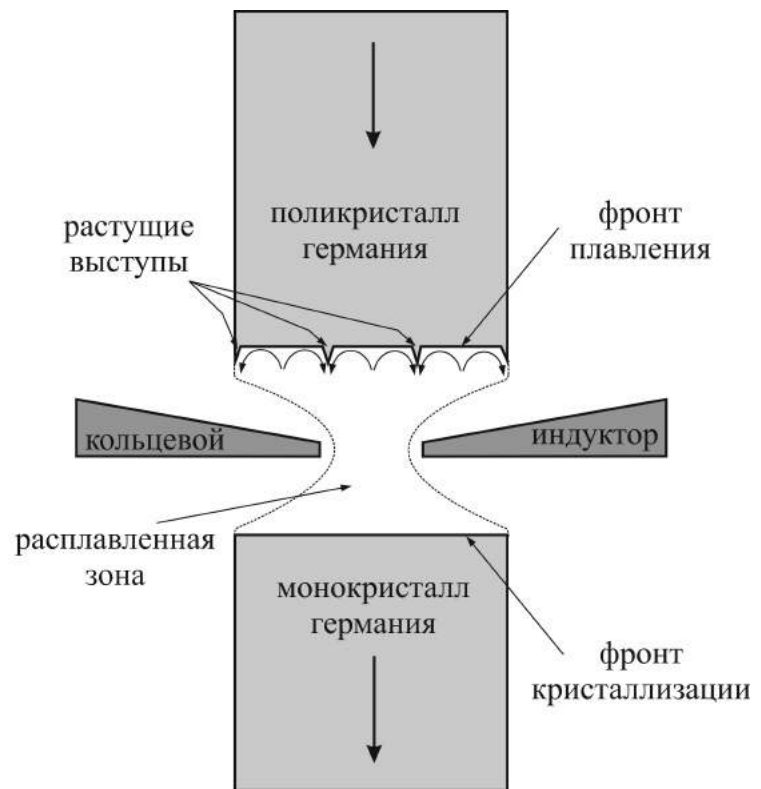
Другим примером является исследование поверхностных волн, возбуждаемых полупогруженной в жидкость сферой, совершающей высокочастотные вертикальные колебания [130]. Изучая связь формы волны и движение жидкости на границе раздела, автор обнаружил формирование многовихревой структуры, появление которой связал с генерацией течения колеблющейся поверхностью. Тем не менее, можно предложить иную интерпретацию. На поверхности воды, использованной в экспериментах, присутствовал адсорбированный слой ПАВ, добавленный самими исследователями в целях «очистки поверхности». Приведем оригинальную цитату из статьи: «In order to keep the water surface clean, a few droplets of detergent were added into the water». Известно [131–133], что в бесконечном слое жидкости осциллирующая сфера генерирует осредненное течение, сходящееся к сфере со всех азимутальных направлений в узкой экваториальной области и растекающееся от сферы в виде двух аксиальных струй, распространяющихся от полюсов. В условиях полупогруженной сферы сходящееся течение распространяется радиально вдоль границы раздела, генерируя поверхностное течение. Представляется наиболее вероятным, что появление

вихревой структуры является результатом взаимодействия такого течения и адсорбированного слоя сурфактанта. Безусловно, гипотеза требует проверки в экспериментах с контролируемыми условиями.

Последний пример, который бы хотелось обсудить, связан с технологией выращивания монокристаллов германия методом плавающей расплавленной зоны [134]. Суть метода заключается в протягивании вертикально ориентированного поликристалла через зону индуктивного нагрева, где формируется жидкий мостик расплава. Ниже зоны материал кристаллизуется, формируя монокристалл. Отсутствие контактов со стенками тигля позволяет добиваться высокой чистоты готового материала. В процессе выращивания кристалла авторы обнаружили формирование острых выступов на фронте плавления на внешнем периметре поликристаллического стержня (см. Рис.3.20а).



(a)



(б)

Рис. 3.20. (а) – Изображение верхнего поликристаллического стержня из германия с острыми выступами по периметру фронта плавления [134]. (б) – схема конвективного течения на поверхности расплавленной зоны с учетом поверхностно-активной примеси.

Рост данных образований, не плавящихся в расплаве, приводил к их касанию с индуктором и, как следствие, необходимости остановки процесса. Авторы не привели объяснения наблюдаемому явлению. Анализ условий проведения процесса позволяет предложить следующий механизм формирования выступов. Наличие перепада температуры между расплавленной зоной и стержнями приводит к формированию интенсивного термокапиллярного течения, направленного на поверхности расплава к фронтам плавления и кристаллизации. В случае чистой поверхности течение представляет собой два конвективных тора, симметрично расположенных относительно индуктора. Известно, что германий всегда содержит некоторое количество оксида германия, даже небольшое содержание которого в приповерхностном слое может существенно уменьшить интенсивность термокапиллярного движения [135, 136]. Это связано с меньшим поверхностным натяжением оксида германия (250 дин/см при температуре плавления $T_{melt} = 1116^\circ C$ [137] по сравнению с германием (680 дин/см при температуре плавления $T_{melt} = 960^\circ C$ [138], что делает его поверхностно-активной примесью в данной паре. Формирование адсорбированной пленки может привести к неустойчивости аксиального течения на поверхности и развитию в застойной зоне, т.е. вблизи фронта плавления, вихревого течения (см. Рис.3.20б). Учитывая бóльшую температуру плавления оксида, можно предположить его накопление в виде твердых включений в застойных точках между вихрями. Продвижение фронта плавления будет, в таком случае, приводить к росту включений в виде тонких выступов, что и наблюдалось в эксперименте.

Перечисленные выше примеры ещё раз подчеркивают важность учета механизма неустойчивости, изученной в данной главе, как при планировании исследований, так и при анализе полученных результатов. Исключить наличие неконтролируемой поверхностно-активной примеси не всегда возможно даже в контролируемых условиях лабораторного эксперимента. В природных и технологических системах однородные по составу жидкости вообще не встречаются. Как показывают представленные выше результаты, для развития неустойчивости достаточно ничтожного количества сурфактанта, способного критическим образом изменить интенсив-

ность и структуру конвективного течения и, следовательно, условия тепло и массопереноса в гидродинамической системе.

4. Взаимодействие термокапиллярного течения с адсорбированным слоем сурфактанта в геометрии Хеле-Шоу.

Глава посвящена изучению взаимодействия термокапиллярного течения с адсорбированным слоем ПАВ. Однако, в отличие от задачи, изученной в предыдущей главе, проблема рассматривается в приближении Хеле-Шоу, под которым обычно понимают проведение исследований в плоском зазоре, поперечный размер которого много меньше двух продольных. В этом случае поперечной составляющей скорости можно пренебречь, считая течение в зазоре двумерным. В ситуации, рассматриваемой в этой главе, такое приближение интересно с точки зрения возможности моделирования устойчивого одномерного движения на поверхности жидкости. Особенно актуальным это становится в задачах с границами раздела, содержащими ПАВ. Как было показано в Главе 3, одномерное течение на поверхности, занятой сурфактантом, абсолютно неустойчиво по отношению к двумерным вихревым возмущениям. Формирующееся в результате неустойчивости вихревое течение, не приводящее к перераспределению молекул ПАВ, является наиболее выгодной конфигурацией с энергетической точки зрения. Таким образом, получить в лабораторных условиях одномерное течение на поверхности, размеры которой сопоставимы в обоих направлениях, становится невозможным в присутствии сурфактанта. В существующих теоретических работах, посвященных вопросам взаимодействия поверхностного течения с пленкой ПАВ, напротив, рассматриваются течения, имеющие только одну составляющую скорости на поверхности. В такой ситуации применение геометрии Хеле-Шоу, в которой малые поперечные размеры поверхности не дают развиваться двумерному течению, позволяет в эксперименте приблизиться по постановке к теоретическим исследованиям.

4.1. Экспериментальная установка и методики измерений.

Эксперименты проводились в вертикальной ячейке Хеле-Шоу, образованной двумя стеклянными пластинами, разделенными стеклянным вкладышем толщиной 0.25 см. Ширина и глубина получившейся полости составляли 1.6 см и 0.8 см соответственно. Благодаря U-образной форме вкладыша верхняя граница жидкости, заполняющей ячейку, оставалась свободной (см. Рис.4.1a). Детали кюветы проходили многоступенчатую процедуру очистки, после чего плотно прижимались друг к другу без использования клея, что позволяло минимизировать потенциальные источники загрязнения. Собранная кювета заполнялась водой высокой степени очистки. Во избежание эффектов, связанных с наличием искривлённой менисковой зоны, жидкость наливалась до уровня верхних кромок стенок кюветы так, чтобы свободная поверхность была плоской. Непосредственно перед проведением эксперимента поверхность воды в кювете подвергалась дополнительной очистке. Воду наливали в кювету с переливом, и избыток жидкости собирали с поверхности аспиратором вместе с остаточными примесями.

Неоднородное распределение температуры на свободной поверхности создавалось при помощи поглощения неоднородного по интенсивности светового потока, направленного нормально поверхности жидкости со стороны газовой фазы (см. Рис.4.1a). Такой способ создания температурного распределения на границе раздела имеет ряд преимуществ по сравнению с традиционно применяемой схемой, при которой задаётся разность температур на боковых стенках с помощью теплообменников. Во-первых, профиль температуры в последнем случае оказывается достаточно сложным как с точки зрения интерпретации результатов эксперимента, так и для сравнения с теоретическими исследованиями. Весь перепад температуры сосредоточен в очень узких областях, прилегающих к горячей и холодной стенкам, в то время как основная часть границы раздела остается практически изотермической. В такой ситуации оценка параметров подобия из экспериментальных данных затруднена в силу неоднозначности выбора характерного градиента температуры. Сравнение с результатами теоретиче-

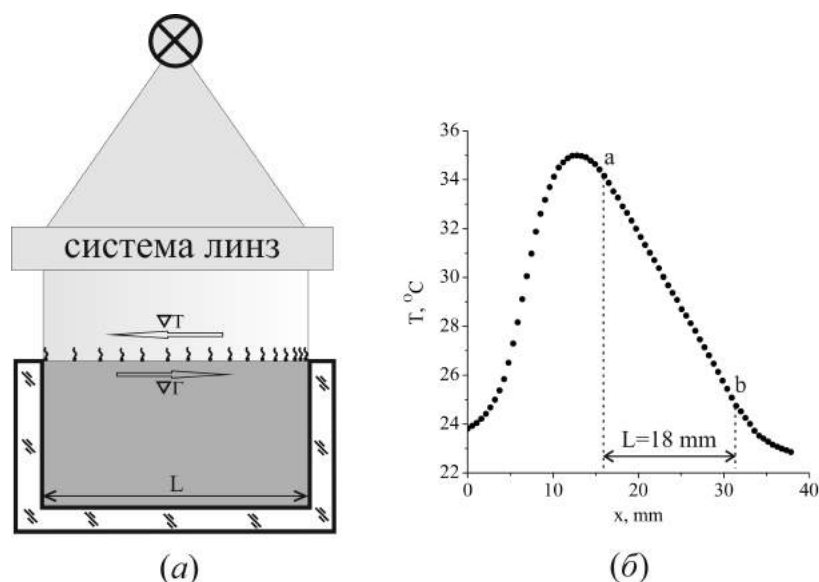


Рис. 4.1. (а) – Схематическое изображение кюветы и способа создания температурной неоднородности на поверхности жидкости. (б) – распределение температуры, генерируемое на неподвижной поверхности источником света и системой линз. Участок $a - b$ с линейным профилем температуры был использован в экспериментах для создания температурной неоднородности на поверхности жидкости.

ских исследований, в которых градиент температуры, как правило, полагается постоянным на всей поверхности жидкости, также представляется непростой задачей. В схеме, предлагаемой в диссертации, профиль температуры остается линейным вдоль поверхности, что соответствует постановке в теоретических работах. Во-вторых, использование излучения для нагрева поверхности делает такой источник тепла практически безынерционным. Изменения теплопотока и, следовательно, температуры поверхности происходят за характерные времена порядка десятых долей секунды, что требуется для изменения температуры нити накаливания.

В качестве источника света использовалась галогенная лампа с нитью накаливания прямоугольной формы размерами $0.3 \times 0.4 \text{ см}^2$. Максимум в спектре излучения лампы и спектре поглощения воды приходится на ближнюю и среднюю часть инфракрасного диапазона, благодаря чему основное тепловыделение, обусловленное поглощением падающего излучения, происходит в узкой приповерхностной области. Система сферических и цилиндрических линз формировала в плоскости поверхности жидкости сильно

вытянутое по одной координате изображение нити накаливания. Распределение температуры на неподвижной поверхности, генерируемое таким световым пятном, показано на Рис.4.1б. Линейный участок $a - b$ длиной 1.8 см был использован в экспериментах для создания постоянного градиента температуры на поверхности жидкости. Предварительные эксперименты в ячейке показали наличие небольших отклонений от линейного распределения вблизи боковых стенок, которые обусловлены разностью теплопроводностей материала стенок и жидкости, а также поворотом течения в этих областях. Близкие теплопроводности стекла и воды ($\sim 1.0 \text{ Вт}/(\text{м} \cdot \text{К})$ и $\sim 0.6 \text{ Вт}/(\text{м} \cdot \text{К})$ соответственно) и тонкие боковые стенки делают вклад первого механизма минимальным. Это подтверждается тем, что искажения профиля температуры резко уменьшались при уменьшении скорости течения в ячейке. Наибольшие отклонения наблюдались в случае чистой границы раздела, когда на всей поверхности развивалась интенсивная термокапиллярная конвекция. Но даже в этом случае область с нелинейными участками занимала не более 5-7 % от всей длины поверхности жидкости, что позволяет считать вклад этих участков профиля незначительным.

Лампа накаливания была подключена к регулируемому источнику постоянного тока, что позволяло изменять интенсивность светового потока, падающего на свободную поверхность, в широких пределах, меняя, тем самым, величину градиента температуры на границе раздела. Как будет показано ниже, величина последнего существенно зависит от наличия и интенсивности конвективного движения. Максимальный перепад температуры, достигаемый на неподвижной поверхности воды при максимальной мощности лампы, составлял $\Delta T \approx 12 \text{ К}$.

Измерения температуры проводились с помощью видеокамеры FLIR SC5000 (Flir Systems Inc., Великобритания) с матрицей, чувствительной в инфракрасном диапазоне (2.5 – 5.0 мкм, разрешение матрицы 320×256 пикселей, чувствительность 20 мК). Пространственное разрешение изображения составляло 0.02 см. Видеоизображение передавалось на ПК, где обрабатывалось с помощью стандартного программного обеспечения FLIR Tools, позволяющего получать временные зависимости как дифференциальных, так и интегральных температурных характеристик.

Благодаря непрозрачности воды в указанном диапазоне чувствительности матрицы измерялась температура именно поверхности жидкости.

Для визуализации структуры конвективного течения в жидкость было добавлено небольшое количество светорассеивающих частиц – посеребренных полых стеклянных сфер (средний диаметр частиц 15 мкм). Достаточно широкое распределение плотности частиц позволяло, путем предварительного сепарирования, отобрать частицы с нейтральной плавучестью. Частицы проходили многоступенчатую процедуру очистки для исключения попадания в воду неконтролируемых поверхностно-активных примесей. Подсветка лазерным ножом (полупроводниковый лазер, $\lambda = 532$ нм) позволяла визуализировать движение частиц в среднем продольном сечении рабочей полости. Изображение регистрировалось при помощи видеокамеры Jai CM 080 GE (Stemmer Imaging Ltd., Великобритания), обладающей высоким пространственно-временным разрешением (1032×778 , 30 кадр/с) и затем передавалось на ПК для дальнейшей обработки. Для визуализации общей структуры течения получали трековые изображения с помощью программного обеспечения DigiFlow (Dalziel Research Partners, Великобритания). Измерение длины отдельных треков позволяло восстанавливать профиль скорости в вертикальном сечении. Для прецизионных измерений малых скоростей вблизи поверхности застойной зоны в качестве объектива видеокамеры использовался микроскоп SteREO Discovery.V12 (Zeiss AG, Германия). В этом случае для подсветки частиц использовалось встроенное освещение микроскопа, направленное вдоль оптической оси. При этом лазерный нож не использовался, поскольку глубина резкости при выбранном увеличении составляла ≈ 0.2 мм.

В качестве ПАВ была использована олеиновая кислота (ЧДА, Merck). В Главе 3 была представлена изотерма поверхностного давления π (Γ/Γ_e) (см. Рис.3.2) и проведено обсуждение ее формы в связи с фазовыми состояниями в слое. Максимальный перепад температуры, создаваемый излучением на поверхности жидкости, составляет $\Delta T \approx 12$ К, что соответствует изменению поверхностного натяжения за счет термокапиллярного механизма $\Delta\sigma \approx 2$ дин/см. Этого достаточно, чтобы манипулировать слоем сурфактанта с поверхностной плотностью $0 < \Gamma/\Gamma_e < 0.42$, т.е. на всем

газовом и в начале жидко-расширенного участка. Олеиновая кислота предварительно растворялась в гексане в объемной пропорции 1:100000. Методики подготовки раствора и нанесения сурфактанта на поверхность воды были аналогичны описанным в Главе 3.

Эксперименты проводились при температуре 25°C. Необходимо отметить, что с ростом приложенного градиента температуры средняя температура на поверхности повышалась максимально на 10 К.

4.2. Результаты экспериментов.

4.2.1. Общий обзор структуры течения.

Наблюдения показали, что структура конвективного течения существенно зависит как от приложенного градиента температуры, так и от поверхностной плотности сурфактанта. Управляющим безразмерным параметром, как и в случае сосредоточенного источника (см. Глава 3), является параметр упругости:

$$E = \frac{\Delta\sigma_{\Gamma}}{\Delta\sigma_T},$$

где $\Delta\sigma_{\Gamma}$ и $\Delta\sigma_T$ – приращения поверхностного натяжения за счет концентрационного и термокапиллярного механизмов соответственно. Соотношение вкладов концентрационного и теплового механизмов Марангони полностью определяет структуру возникающего конвективного течения. В случае $E > 1$, когда вклад термокапиллярного механизма меньше концентрационного, последний всегда уравнивает первый на всей поверхности. Баланс касательных напряжений на границе раздела, тем не менее, не означает полную неподвижность жидкости на поверхности. Слабое движение, $(10^{-4} - 10^{-2})$ см/с, скорость которого определяется количеством сурфактанта, всегда присутствует на поверхности. Подробнее данный вопрос будет рассмотрен в разделе 4.2.2.

В объеме, по мере его прогрева, развивается слабое течение, обусловленное, в основном, термогравитационным механизмом конвекции (см. Рис.4.2а, средний ряд). Симметричный конвективный вихрь развивается во

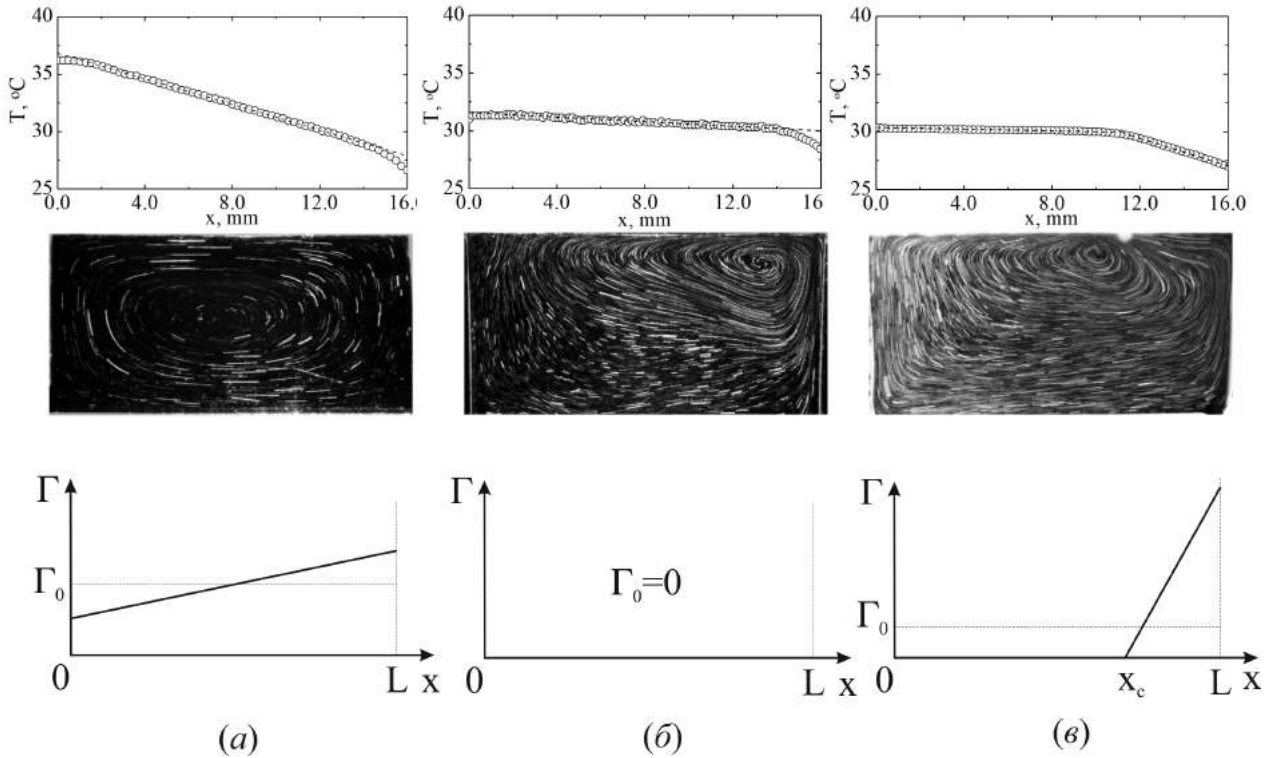


Рис. 4.2. Распределение температуры вдоль поверхности жидкости (верхний ряд), структура течения (средний ряд) и схема распределения сурфактанта вдоль границы раздела (нижний ряд) для случаев: (а) – $E > 1$, (б) – $E = 0$, (в) – $0 < E < 1$.

всей ячейке. На поверхности наблюдается линейное распределение температуры (см. Рис.4.2а, верхний ряд). На Рис.4.2а (нижний ряд) схематически представлено распределение сурфактанта для рассматриваемого случая. Линейное распределение температуры вдоль всей поверхности порождает появление ответного линейного распределения поверхностной концентрации сурфактанта, величина которой на границах определяется условием равенства перепадов поверхностного натяжения за счет концентрации и температуры, а также условием сохранения количества сурфактанта. В этом состоит основное отличие от случая, рассмотренного в Главе 3, где течение, созданное сосредоточенным источником, сжимает слой сурфактанта к периферии, подобно барьеру. Сурфактант при этом распределен равномерно. В рассматриваемом в данной главе случае действие на пленку распределено по всей ее поверхности, что приводит к неоднородному распределению сурфактанта.

В случае $E = 0$, соответствующего границе раздела, свободной

от молекул сурфактанта, на всей поверхности развивается интенсивная ($10^{-1} - 10^0$ см/с) термокапиллярная конвекция, скорость которой зависит от приложенного градиента температуры. В силу того, что максимум скорости в этом случае находится на поверхности, центр вихря расположен ближе к межфазной границе (см. Рис.4.2б, средний ряд). Видно также, что центр вихря смещен к холодному краю, что объясняется расположением максимума скорости вблизи более холодного края поверхности. Так как термокапиллярная сила постоянна вдоль границы раздела, то элемент жидкости движется с постоянным ускорением, приобретая максимальную скорость ближе к холодному краю. Интересно, что структура конвективного течения в случае, когда разность температур на боковых стенках поддерживается теплообменниками, является, по сути, зеркальным отражением изображенной на Рис.4.2б (средний ряд), а именно центр вихря всегда прижат к горячей стенке. Это обусловлено нелинейным распределением температуры, при котором элемент жидкости приобретает максимальную скорость вблизи горячей стенки, и затем постепенно замедляется на изотермической поверхности.

Распределение температуры на чистой поверхности (см. Рис.4.2б, верхний ряд) линейно, с небольшими отклонениями вблизи стенок, связанными с поворотом течения. При одинаковой мощности лампы, перепад температуры вдоль поверхности значительно меньше, чем в случае $E > 1$. Это связано с различными механизмами теплопередачи. В случае чистой поверхности конвективный механизм переноса тепла является преобладающим, тогда как в опытах с сурфактантом движение на поверхности крайне слабое и тепло, в основном, переносится за счет теплопроводного (или кондуктивного) механизма.

Наиболее интересная ситуация наблюдается при $0 < E < 1$. В этом случае концентрационный механизм не может сбалансировать температурный на всей поверхности, в результате чего вблизи горячего края появляется участок границы раздела, свободный от молекул сурфактанта (Рис.4.2в, нижний ряд), который оказывается сосредоточен ближе к холодному краю. Структура конвективного течения различна на этих участках (Рис.4.2в, средний ряд). На свободной поверхности, где температурный механизм ни-

чем не скомпенсирован, развивается интенсивная термокапиллярная конвекция, как в случае $E = 0$. На участке, занятом сурфактантом, оба механизма компенсируют друг друга, в результате чего на поверхности устанавливается крайне медленное течение, как в случае $E > 1$. В литературе эта часть поверхности называется застойной зоной, а граница между зонами – застойной точкой (stagnant point) или кромкой Рейнольдса (Reynolds ridge). Положение застойной точки зависит от величины параметра упругости. Уменьшение последнего приводит к смещению застойной точки в сторону холодной части поверхности. В области застойной точки величина поверхностной скорости уменьшается на два-три порядка. В результате резкого уменьшения вертикального градиента горизонтальной скорости в приповерхностной области, течение ныряет под застойную зону. Центр вихря оказывается под свободной частью поверхности, ближе к холодной части.

Распределение температуры на поверхности отражает структуру течения (Рис.4.2в, верхний ряд). На температурном профиле видны два линейных участка, различающиеся наклоном. В области чистой поверхности перепад температуры составляет десятые доли градуса, тогда как в области застойной зоны – несколько градусов. Учитывая одинаковый вдоль всей поверхности градиент интенсивности падающего излучения, можно сделать вывод, что разница в наклонах температурного профиля обусловлена различными по скорости механизмами передачи тепла: конвективным на чистой поверхности и преимущественно теплопроводным в области застойной зоны. Излом профиля соответствует положению застойной точки. Одновременные исследования структуры течения подтверждают данные предположения. Таким образом, наблюдение профиля температуры с помощью тепловизора позволяет визуализировать застойную зону и измерять положение застойной точки и без применения трассерных методов визуализации структуры течения. Последние применялись в данном исследовании, в основном, для восстановления профилей скорости.

4.2.2. Структура течения при $E > 1$ и методика измерения коэффициента поверхностной диффузии в газообразных слоях сурфактанта.

При величине параметра упругости больше единицы максимальный перепад поверхностного натяжения за счет концентрационного механизма, который может создать имеющееся на поверхности количество сурфактанта, больше, чем перепад поверхностного натяжения, созданный на поверхности термокапиллярным механизмом. Поэтому на всей поверхности оба механизма уравнивают друг друга. В строгом смысле баланс концентрационно-капиллярного и термокапиллярного касательных напряжений на границе раздела означает, что параметр упругости в каждой точке поверхности в точности равен единице. Значение параметра упругости больше единицы лишь подчеркивает, насколько система потенциально далека от ситуации, при которой происходит открытие «полыньи», т.е. появление участка поверхности, свободного от сурфактанта. Измерения скорости на поверхности показывают, что баланс устанавливается не мгновенно, а является результатом динамического процесса, характерное время которого определяется, в основном, поверхностной плотностью сурфактанта. На Рис.4.3 представлен график зависимости скорости на поверхности в точке с продольной координатой $x = L/2$ (середины свободной поверхности) от времени с момента включения источника тепла. Все кривые получены для параметра упругости чуть больше единицы. Учитывая, что время разогрева лампы составляет доли секунды, можно считать градиент температуры полностью сформированным в момент времени $t = 0$. В рассматриваемых экспериментах измерялась скорость частиц, непосредственно контактирующих с поверхностью. Так как материал частиц хорошо смачивается водой, то они всегда полностью погружены в жидкость. В силу наличия вертикального градиента скорости вблизи границы раздела в эксперименте измеряется среднее значение скорости на конечном размере частицы. Если градиент скорости направлен к поверхности, то получается заниженное значение, и наоборот. Для минимизации данной погрешности при измерениях брались в расчет только частицы с размером 5 мкм и менее.

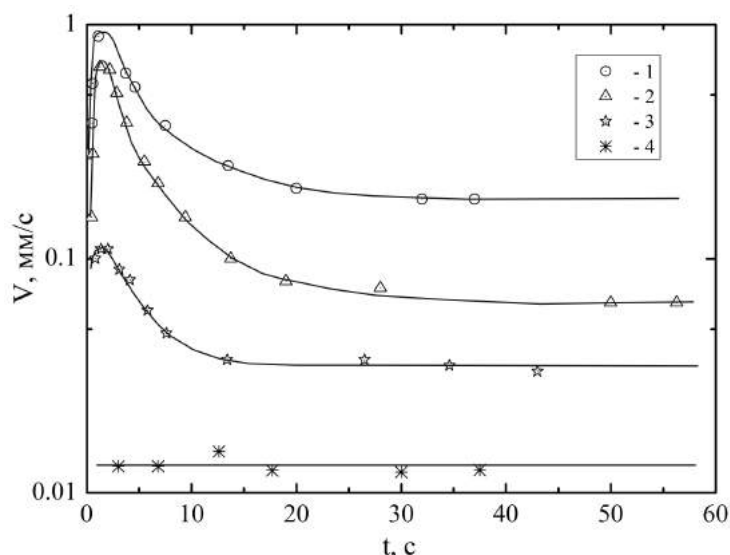


Рис. 4.3. Временная динамика скорости на поверхности жидкости в точке с продольной координатой $x = L/2$ с момента включения источника тепла. Цифрами на графике обозначены различные начальные поверхностные концентрации сурфактанта Γ_0/Γ_e : 1 – 0.1, 2 – 0.18, 3 – 0.34, 4 – 0.43.

Видно (Рис.4.3), что в течение первых 1-2 секунд происходит быстрое увеличение скорости за счет термокапиллярного механизма. По мере перераспределения сурфактанта и формирования встречного градиента поверхностного натяжения концентрационно-капиллярной природы скорость на поверхности достигает максимума и начинает уменьшаться. После достижения равновесия скорость на границе раздела перестает меняться. Следует отметить, что баланс касательных напряжений на границе раздела не означает полную неподвижность жидкости на поверхности. Величина установившейся скорости, а также скорость в максимуме и характерное время установления равновесия зависят от поверхностной плотности сурфактанта. В сильно разреженных слоях (см. Рис.4.3, кривая 1, $\Gamma/\Gamma_e = 0.1$) равновесие достигается за времена порядка 15 – 20 с, а скорость на поверхности $\sim 10^{-2}$ см/с. С увеличением количества сурфактанта равновесие наступает быстрее, скорость в максимуме и равновесная скорость уменьшаются. В сильно концентрированных слоях (см. Рис.4.3, кривая 4, $\Gamma/\Gamma_e = 0.43$) максимум пропадает. Скорее всего, величина максимума настолько мала, а равновесие наступает настолько быстро, что этот процесс не разрешается при измерениях. С ростом поверхностной концентрации меняется и

распределение скорости в объеме. На Рис.4.4 представлены вертикальные профили горизонтальной скорости для двух значений Γ/Γ_e . Видно, что при небольшой поверхностной плотности сурфактанта (кривая 1, $\Gamma/\Gamma_e = 0.3$), максимум скорости расположен на границе раздела, что говорит о превалировании термокапиллярного механизма. Увеличение содержания молекул олеиновой кислоты на поверхности приводит к качественной смене вида профиля скорости (кривая 2, $\Gamma/\Gamma_e = 0.42$). Основной вклад в формирование конвективного движения смещается к термогравитационному механизму. Результирующий график зависимости равновесной скорости жидкости на границе раздела от начальной поверхностной плотности сурфактанта представлен на Рис.4.5. Видно, что в сильно разряженных газовых слоях скорость может достигать $\sim 10^{-2}$ см/с, быстро убывая на порядок при приближении к Γ/Γ_e , соответствующему жидко-расширенному фазовому состоянию.

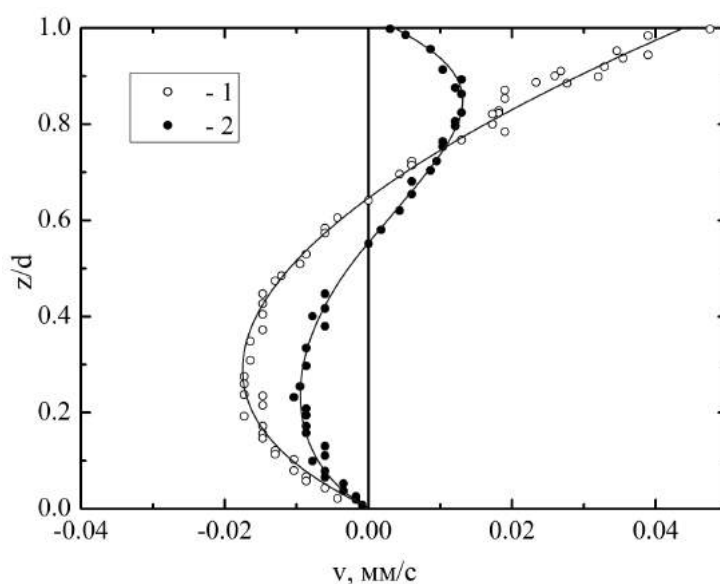


Рис. 4.4. Распределение горизонтальной скорости поперек слоя жидкости в случае $E > 1$ для двух значений Γ/Γ_e : 1 – 0.3, 2 – 0.42.

Наличие движения жидкости на поверхности в условиях баланса касательных напряжений говорит о динамическом характере равновесия. Действительно, формирование градиента поверхностной плотности молекул сурфактанта приводит к возникновению массопотока вдоль границы раздела, обусловленного поверхностной диффузией. В таких условиях на поверхности всегда должно существовать движение жидкости, так как по-

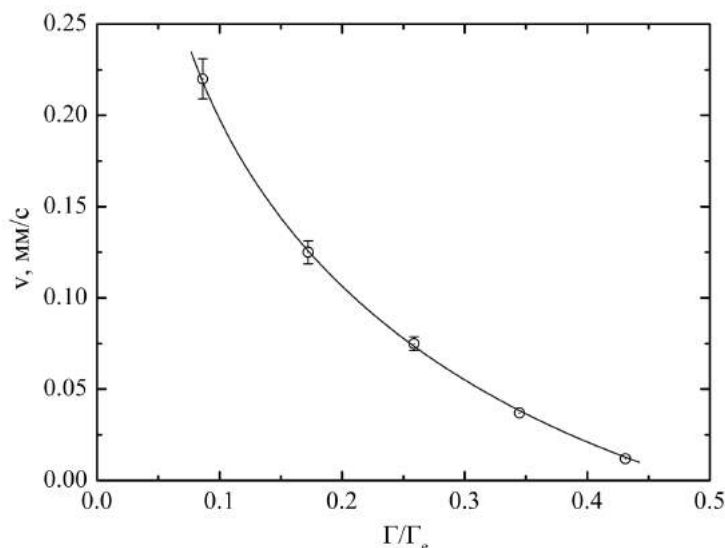


Рис. 4.5. Зависимость равновесной скорости жидкости на границе раздела от начальной поверхностной плотности сурфактанта.

стоянное размытие неоднородного распределения сурфактанта механизмом поверхностной диффузии должно компенсироваться восстанавливающим его термокапиллярным течением. Чем быстрее процесс диффузии, тем больше равновесная скорость. Таким образом, величина скорости конвективного движения жидкости на границе раздела содержит информацию о величине коэффициента поверхностной диффузии, что может быть использовано для разработки метода его измерения.

В отличие от диффузии в объеме, измерениям поверхностной диффузии посвящено считанное количество научных исследований. Связано это, в основном, со сложностями процесса измерения. Традиционные методы измерения диффузии, при которых изучается временная эволюция градиента вещества, не годятся, так как наличие любой неоднородности поверхностной плотности молекул ПАВ немедленно приведет к возникновению концентрационно-капиллярного течения. Существующие измерения, как правило, относятся к измерению самодиффузии меченных каким-либо способом молекул в изначально однородных слоях с большой поверхностной плотностью, находящихся в жидко-расширенном или конденсированном фазовом состоянии [139–147]. Большое внимание при этом уделяется термостатированию образцов для минимизации флуктуаций температуры и концентрации на поверхности раздела, что является основным источ-

ником погрешности измерения. В газообразных пленках сурфактантов такая методика становится невозможной в силу роста относительного вклада флуктуаций температуры и поверхностной плотности, что существенно увеличивает погрешность измерений. Между тем именно газообразные слои ПАВ интересны для большинства гидродинамических приложений, что делает весьма актуальной разработку новых методик измерения коэффициента поверхностной диффузии.

Для нахождения коэффициента поверхностной диффузии была использована формула, предложенная в теоретическом исследовании Хомси [111]. В этой работе было изучено взаимодействие термокапиллярного течения, генерируемого постоянным вдоль границы раздела градиентом температуры, со слоем сурфактанта. В статье рассмотрен случай $E > 1$, когда застойная зона занимает всю поверхность. Линейное уравнение состояния предполагало существование слоя всегда только в одном, газовом, фазовом состоянии. В равновесной ситуации поверхностная скорость u_s в точке с координатой x может быть найдена из следующего соотношения:

$$u_s = D_s \left(\frac{\gamma_T \Delta T}{x \gamma_T \Delta T + l \gamma_T \Gamma_0} \right), \quad (4.1)$$

где γ_T и γ_Γ – температурный и концентрационный коэффициенты зависимости поверхностного натяжения, ΔT – перепад температуры на всей поверхности длиной l , Γ_0 – начальная поверхностная концентрация сурфактанта, D_s – коэффициент поверхностной диффузии. Формула была получена в приближении больших значений поверхностного числа Пекле (см. формулу 3.3). В рассматриваемом случае при $\gamma_T \sim 10^{-1}$ дин/(см · К), $\Delta T \sim 10$ К, $l \sim 1$ см, $\eta \sim 10^{-2}$ П получаем $Pe_s \gg 1$ при любых разумных значениях $D_s < 1$, что делает возможным применение формулы. Учитывая, что все измерения в нашем случае проводились в среднем сечении, что соответствует $x = 0$ и что $l = L$, получаем для коэффициента поверхностной диффузии: $D_s = u_s L E$. Для вычисления необходимо брать в рассмотрение только те ситуации, где вся поверхностная фаза находилась в газообразном состоянии, поскольку формула (4.1) была получена при этом предположении. В нашем случае это соответствует диапазону $\Gamma/\Gamma_e \leq 0.38$, хотя, строго говоря, правый край диапазона брать в рассмотрение не со-

всем корректно, так как при сжатии часть слоя, примыкающая к холодной границе, будет находиться уже в начале жидко-расширенного участка изотермы. Учитывая, что $L = 1.6$ см и $E = 1.1$, получаем $D_s \approx 4 \cdot 10^{-2}$ см²/с для самых разреженных пленок и $D_s \approx 5 \cdot 10^{-3}$ см²/с для участка на стыке газового и жидко-расширенного участков.

Сравним полученный результат с имеющимися в научной литературе данными. Как уже отмечалось выше, все опубликованные измерения [139–147] относятся к сильно концентрированным пленкам, находящимся в жидко-расширенном, жидко-конденсированном или конденсированном состояниях. На схеме, представленной на Рис.4.6, собраны все результаты измерений. Видно, что поверхностная диффузия существенно зависит от фазового состояния, в котором находится пленка сурфактанта. Самая медленная диффузия наблюдается в конденсированных пленках, т.е. в случае максимальной упаковки молекул ПАВ, близкой к насыщенному монослою. В жидких и жидко-расширенных пленках диффузия заметно быстрее. Существенный разброс значений внутри каждого диапазона обусловлен зависимостью поверхностной диффузии от массы самой молекулы. Молекулярный вес исследованных веществ колеблется в диапазоне ($10^2 - 10^4$) Да. Тем не менее, зависимость коэффициента диффузии от фазового состояния четко прослеживается. С этой точки зрения, результаты, полученные в данной работе, хорошо коррелируют с представленными на схеме, демонстрируя самое большое значение коэффициента поверхностной диффузии для газообразных слоев сурфактанта. Достоверность полученных результатов также подтверждается сравнением с теоретическими работами. Существующие теоретические предсказания величины D_s [148], полученные методами молекулярно-кинетической теории для этого диапазона концентраций, варьируются в интервале ($10^{-2} - 10^{-5}$) см²/с в зависимости от используемой кинетической модели взаимодействия молекул ПАВ.

Интересно отметить, что величины диффузии, полученные для поверхностной фазы хорошо коррелируют по порядку величины со скоростью диффузионных процессов в объемной фазе. Действительно, диапазоны значений коэффициента диффузии практически совпадают в конденсированных пленках и твердых телах, жидких и жидко-расширенных пленках и

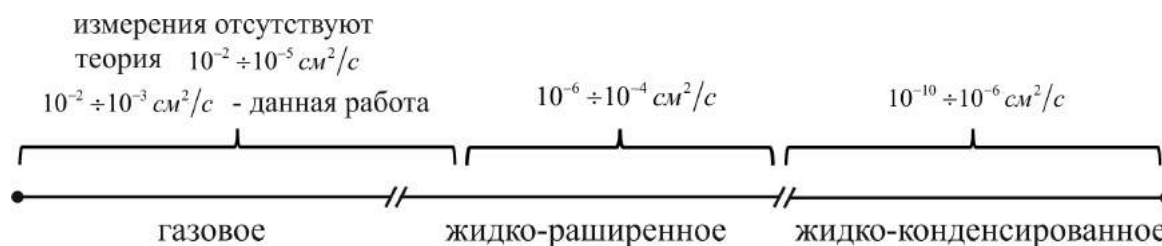


Рис. 4.6. Схема, иллюстрирующая результаты измерений поверхностной диффузии в различных диапазонах поверхностной концентрации, полученные ранее другими исследователями [139–148] и измеренные в настоящей работе.

растворах жидкостей, газообразных пленках и смесях газов, соответственно.

4.2.3. Структура течения при $0 < E \leq 1$ и положение застойной точки.

Сначала рассмотрим случай $E = 1$, что соответствует появлению у горячего края поверхности участка, свободного от сурфактанта. Рис. 4.7а схематически демонстрирует эволюцию распределения поверхностной плотности при приближении параметра упругости к единице. По мере увеличения приложенного градиента температуры растет и перепад поверхностной плотности молекул ПАВ до тех пор, пока у горячего края поверхностная концентрация не достигнет нулевого значения. Такая ситуация соответствует открытию «полыньи», т.е. появлению свободного от молекул ПАВ участка поверхности, на котором развивается интенсивная термокапиллярная конвекция. Для измерения критического перепада температуры была использована следующая экспериментальная методика. Перепад температуры на поверхности постепенно увеличивался, начиная от нулевого значения, до величины, при которой наблюдалось формирование конвективного участка. Полученная с помощью тепловизора видеозапись анализировалась на ПК в программе FLIR Tools (FLIR Systems, Inc.). По результатам анализа видеозаписи, полученной с помощью тепловизора, строилась временная зависимость перепада температуры на двух равных по длине участках поверхности длиной 2 – 3 мм каждый, расположенных вблизи горячей

и холодной стенки. Пример такой зависимости представлен на Рис.4.8.

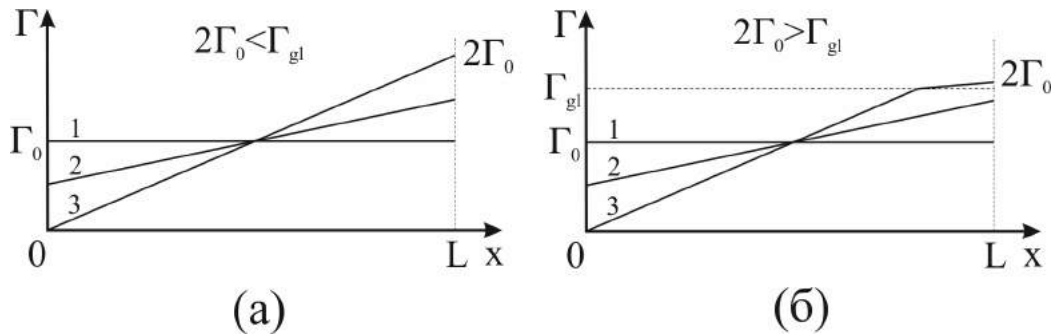


Рис. 4.7. Схема, иллюстрирующая эволюции распределения поверхностной плотности сурфактанта при приближении параметра упругости к единице для случаев: (а) – $2\Gamma_0 < \Gamma_{gl}$, (б) – $2\Gamma_0 > \Gamma_{gl}$. Цифрами на схеме обозначены случаи: 1 – начальное распределение сурфактанта при выключенном источнике тепла, 2 – $E > 1$, 3 – $E = 1$.

На начальном участке зависимости перепад на указанных отрезках одинаковый, что говорит о постоянстве градиента температуры вдоль всей поверхности. Начиная с некоторого момента времени, т.е. при достижении некоторой величины общего перепада температуры на всей поверхности, рост локальной разности температур на границах отрезка вблизи горячего края сменяется его уменьшением, что обусловлено появлением конвективного теплопереноса, связанного с формированием «полыньи». На противоположном, холодном, крае поверхности локальный перепад температуры продолжает расти. Разность температур между краями ячейки, измеренная в этот момент времени, и есть искомый критический перепад температуры ΔT^* . Результаты экспериментов показали, что его величина зависит от начальной концентрации Γ_0 . Чем больше сурфактанта было нанесено на поверхность в начале эксперимента, тем больший перепад необходимо организовать для открытия «полыньи».

На Рис.4.9 представлена величина критического приращения поверхностного натяжения $\Delta\sigma_T^* = \gamma_T \Delta T^*$ за счет термокапиллярного механизма как функция начальной концентрации Γ_0/Γ_e . Здесь же для сравнения приведена изотерма олеиновой кислоты (штриховая линия). Видно, что кривые подобны, но не совпадают. На первый взгляд этот факт кажется странным, так как обе зависимости отражают рост приложенного кас-

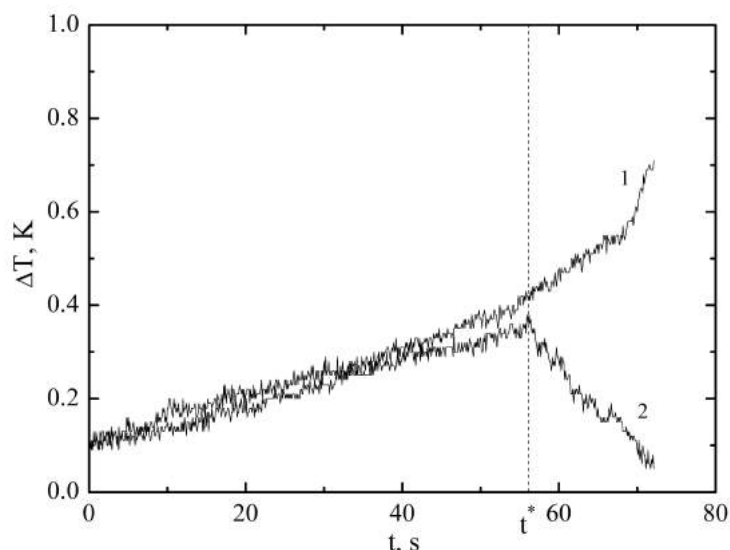


Рис. 4.8. Временная зависимость перепада температуры на двух участках поверхности, расположенных вблизи горячей и холодной стенки.

тельного напряжения, удерживающего слой, по мере роста концентрации сурфактанта. Однако в действительности между ними есть кардинальные различия. Изотерма получена путем измерения поверхностного давления в слое, концентрация ПАВ в котором постоянна вдоль поверхности раздела. В лабораторных условиях зависимость получают в лотке Ленгмюра с подвижными барьерами, изменение расстояния между которыми позволяет менять площадь субфазы и, следовательно, поверхностную концентрацию. Поверхностное давление измеряется методом пластинкой Вильгельми при каждом положении барьеров. Давление на слой при этом приложено вдоль линии контакта барьера и поверхностной фазы. Совсем иная ситуация в рассматриваемом нами случае. Постоянный градиент температуры вдоль поверхности означает наличие постоянного в каждой точке касательного напряжения термокапиллярной природы, благодаря чему на границе раздела формируется постоянный градиент поверхностной плотности.

Для достижения баланса касательных напряжений на поверхности, как видно из Рис.4.7а, необходимо создать перепад поверхностного натяжения за счет тепла $\Delta\sigma_T = \Delta\sigma_\Gamma = 2\gamma_\Gamma\Gamma_0$, что в два раза больше поверхностного давления, необходимого для удержания слоя с постоянной концентрацией. Именно поэтому зависимость $\Delta\sigma_T^*(\Gamma_0)$ имеет в два раза больший наклон по сравнению с изотермой при малых значениях поверхностной

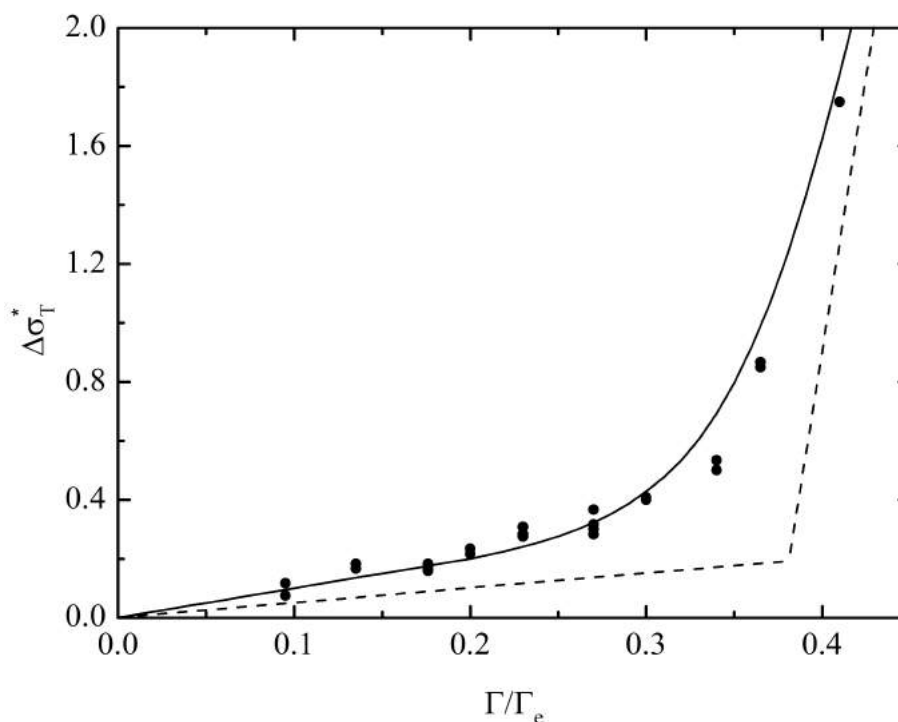


Рис. 4.9. Зависимость критического приращения поверхностного натяжения за счет термокапиллярного механизма от относительной начальной поверхностной концентрации сурфактанта. Точками обозначены данные, полученные в эксперименте, сплошная линия – результаты расчетов по формуле (4.2). Штриховая линия – изотерма олеиновой кислоты.

концентрации. Ещё одно различие вышеуказанных ситуаций связано с фазовым переходом в слое сурфактанта. В случае сжатия последнего барьером, весь слой целиком переходит из газообразного в жидко-расширенное состояние по достижении критической концентрации $\Gamma_{gl} \approx 0.38\Gamma_e$. Именно поэтому изотерма, полученная на барьерной системе, выглядит, как два линейных участка, соответствующих разным фазовым состояниям, с достаточно резким переходом между ними. В тепловом случае, если $2\Gamma_0 > \Gamma_{gl}$, то на момент достижения $E = 1$ часть поверхностной фазы около холодного края поверхности перейдет в жидко-расширенное состояние (см. Рис.4.7б). Таким образом, на поверхности установится ситуация, непривычная для физхимии сурфактантных систем, когда разные части поверхностного слоя одновременно находится в различном фазовом состоянии. Суммарное давление, оказываемое таким слоем, складывается из двух частей, характеризующихся различной концентрационной зависимостью поверхностного

натяжения $\Delta\sigma_T = \Delta\sigma_\Gamma = \pi_g + \pi_l = \gamma_g\Gamma_{gl} + \gamma_l(\Gamma_m - \Gamma_{gl})$. Здесь π_g и π_l – поверхностное давление на газовом и жидко-расширенном участках соответственно, γ_g и γ_l – концентрационные зависимости поверхностного натяжения на газовом и жидко-расширенном участках соответственно, Γ_m – поверхностная концентрация сурфактанта у холодной стенки ячейки. По мере роста площади, занимаемой жидко-расширенным участком слоя, увеличивается наклон зависимости $\Delta\sigma_T^*(\Gamma_0)$, постепенно приближаясь к наклону изотермы на ее жидко-расширенном участке. Следует отметить, что данный наклон никогда не будет достигнут, так как хотя бы небольшая часть слоя у горячей стенки всегда будет находиться в газовом состоянии.

Таким образом, две кривые, изображенные на Рис.4.9, представляют собой изотермы одного и того же вещества, полученные в различных условиях. Нижняя кривая получена при локальном воздействии (барьер) на слой с постоянной вдоль поверхности концентрацией сурфактанта и одномоментной сменой фазового состояния. Такой тип изотерм обычно приводится в учебниках по физхимии. Верхняя кривая получена при распределенном воздействии на слой, что приводит к неоднородной поверхностной концентрации сурфактанта вдоль границы раздела и возможности одновременного сосуществования различных частей слоя в разных фазовых состояниях.

Экспериментально полученная зависимость $\Delta\sigma_T^*(\Gamma_0)$ может быть описана аналитически из простых физических соображений и геометрических соотношений. Во-первых, необходимо записать изотерму в следующем виде, используя кусочно заданное представление функции:

$$\pi = \begin{cases} \gamma_g\Gamma, & \text{если } \Gamma \leq \Gamma_{gl}; \\ \gamma_g\Gamma_{gl} + \gamma_l(\Gamma - \Gamma_{gl}), & \text{если } \Gamma > \Gamma_{gl}. \end{cases}$$

Во-вторых, следует учесть тот факт, что градиент поверхностного натяжения за счет концентрационно-капиллярного механизма должен быть одинаковым как на газовом, так и на жидко-расширенном участках:

$$\frac{\gamma_g\Gamma_{gl}}{l} = \frac{\gamma_l(\Gamma_m - \Gamma_{gl})}{L - l},$$

где L – полный продольный размер поверхности, l – размер поверхности, занятой газовой фазой. Также необходимо учесть закон сохранения количества сурфактанта на поверхности жидкости:

$$\Gamma_0 L = \int_0^L \Gamma dx = \Gamma_{gl} \frac{l}{2} + (\Gamma_{gl} + \Gamma_m) \frac{L-l}{2}.$$

Решая данную систему уравнений, получаем выражение для критического приращения поверхностного натяжения за счет термокапиллярного механизма:

$$\Delta\sigma_T^* = \begin{cases} 2\gamma_g \Gamma_0, & \text{если } 2\Gamma_0 \leq \Gamma_{gl}; \\ \gamma_g \Gamma_{gl} + \gamma_l (\Gamma_m - \Gamma_{gl}) & \text{если } 2\Gamma_0 > \Gamma_{gl}. \end{cases} \quad (4.2)$$

где

$$\Gamma_m = \Gamma_0 + \sqrt{\Gamma_0^2 - \left(1 - \frac{\gamma_g}{\gamma_l}\right) (2\Gamma_0 - \Gamma_{gl}) \Gamma_{gl}}.$$

Кривая, рассчитанная из (4.2), представлена на Рис.4.9 сплошной линией. Видно, что результаты расчетов хорошо описывают результаты экспериментов, что говорит о правильном понимании физических процессов, происходящих в поверхностной фазе.

При превышении параметром упругости единичного значения на границе раздела формируются две зоны. У края с большей температурой появляется зона свободной поверхности, где развивается интенсивная термокапиллярная конвекция. Весь сурфактант сосредоточен в застойной зоне, прижатой к холодному краю поверхности. Асимметрия условий на поверхности определяет различную структуру конвективного течения в объеме под каждой из зон. На Рис.4.10 приведены вертикальные профили горизонтальной скорости течения жидкости в объеме под свободной и застойной зонами. Видно, что они существенно различаются. Под свободной поверхностью наблюдается характерный термокапиллярный профиль скорости с максимумом на границе раздела. В области застойной зоны максимум скорости расположен в объеме и профиль близок к адвективному течению в ячейке с твердыми границами. Тем не менее, на верхней поверхности

нет прилипания, а наблюдается проскальзывание с очень маленьким характерным значением скорости, о чем уже говорилось выше. Достаточно сложный профиль скорости в объеме жидкости в обоих случаях связан с несимметричной формой вихря, навязываемой несимметричными граничными условиями на свободной поверхности.

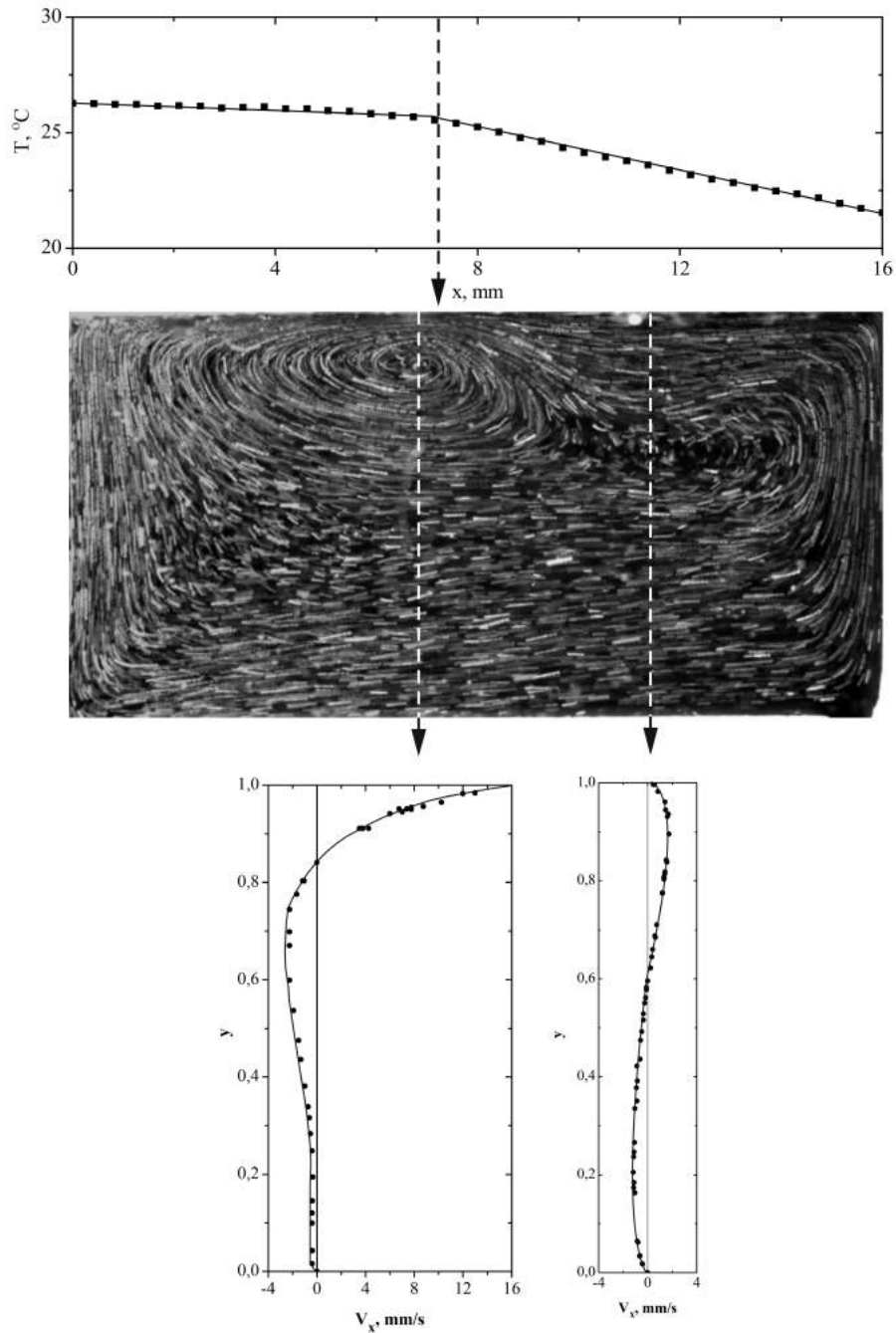


Рис. 4.10. Распределение температуры на поверхности (вверху), структура конвективного течения (в середине) и вертикальные профили горизонтальной скорости под свободной и застойной зонами (внизу) для случая $0 < E < 1$.

Положение застойной точки, разделяющей свободную и застойную зоны, зависит от величины параметра упругости, по мере уменьшения которого граница между зонами сдвигается в сторону холодного края поверхности. На Рис.4.11 представлен график зависимости положения застойной точки от величины параметра упругости для трех различных значений начальной поверхностной плотности молекул олеиновой кислоты. Координата застойной точки определена в долях к общей длине свободной поверхности $\tilde{x}_c = x_c/L$ и отсчитывается от горячего края поверхности. Видно, что при небольшом содержании сурфактанта $\Gamma_0 = 0.1 \Gamma_e$ в области малых значений параметра упругости экспериментальные точки лежат на биссектрисе $\tilde{x}_c = 1 - E$, образуя линейную зависимость. Однако, начиная с $\tilde{x}_c \approx 0.5$, зависимость становится нелинейной – рост свободной зоны замедляется с уменьшением параметра упругости. $\tilde{x}_c \approx 0.5$ означает, что площадь, занятая сурфактантом, сократилась вдвое по сравнению с изначальной. У холодного края поверхностная плотность становится равной $\Gamma_m = 0.4 \Gamma_e$, т.е. появляется участок с жидко-расширенным фазовым состоянием. Связанное с этим снижение сжимаемости слоя и приводит к отклонению от линейной зависимости. При увеличении начальной поверхностной концентрации до $\Gamma_0 = 0.18 \Gamma_e$ участок с новым фазовым состоянием появляется при $\tilde{x}_c \approx 0.1$, поэтому область существования линейной зависимости существенно сокращается. Наконец, при $\Gamma_0 = 0.26 \Gamma_e$ слой сурфактанта у холодной стенки находится в жидко-расширенном состоянии уже при $E = 1$, что делает невозможным существование линейного участка при данной начальной концентрации сурфактанта. Таким образом, зависимости $\tilde{x}_c(E)$ повторяют, по сути, форму изотермы $\Delta\sigma_T^*(\Gamma_0)$, но начиная с различных Γ_0 .

Простые физические соображения, представленные выше, позволяют аналитически описать полученные экспериментальные результаты. Система уравнений, как и ранее, содержит изотерму олеиновой кислоты, записанную в виде кусочно заданной функции и закон сохранения количества сурфактанта на поверхности. Необходимо также учесть условие постоянства градиента поверхностного натяжения на газовом и жидко-расширенном участках в области застойной зоны. Разрешая систему урав-

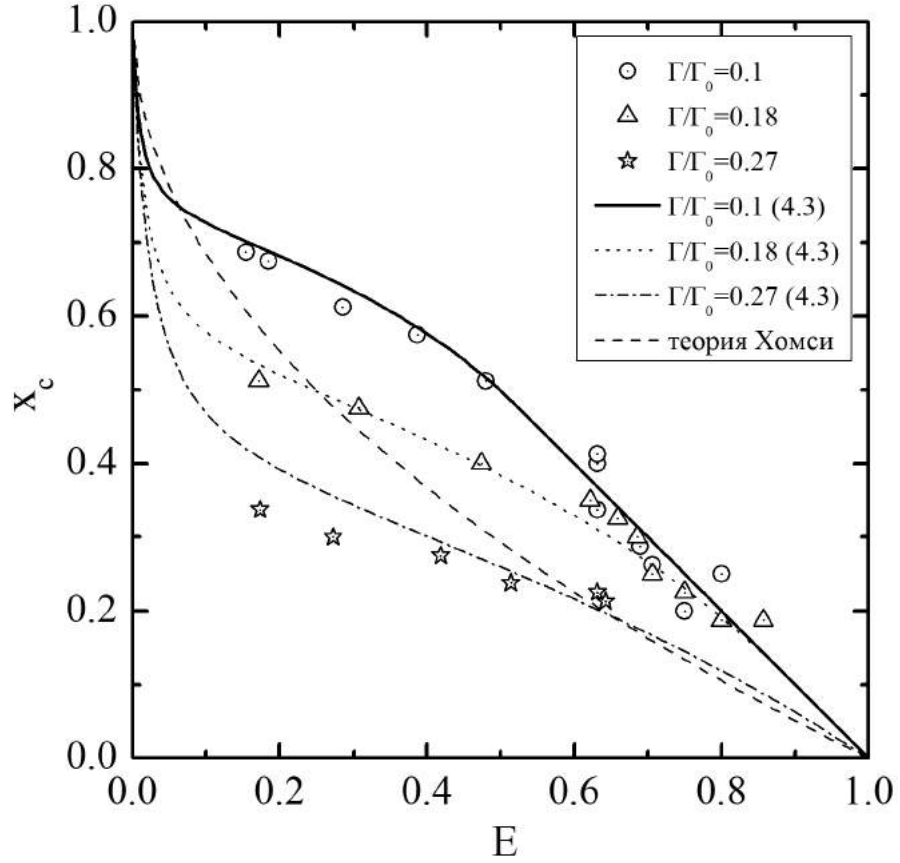


Рис. 4.11. Зависимость положения застойной точки от величины параметра упругости, измеренная в эксперименте (точки) и рассчитанная по уравнению (4.3) (линии), для трех различных значений начальной поверхностной плотности (указаны на графике). Штриховая линия – результаты расчета по теории Хомси.

нений относительно параметра упругости, получаем следующее выражение, связывающее его с положением застойной точки:

$$E = \begin{cases} 1 - \tilde{x}_c, & \text{если } 2\tilde{\Gamma}_0 \leq \Gamma_{gl}; \\ \frac{2\gamma_g\Gamma_0}{\gamma_g\Gamma_{gl} + \gamma_l \left((\tilde{\Gamma}_0 - \Gamma_{gl}) + \sqrt{\tilde{\Gamma}_0^2 - \left(1 - \frac{\gamma_g}{\gamma_l}\right) (2\tilde{\Gamma}_0 - \Gamma_{gl})\Gamma_{gl}} \right)}, & \text{если } 2\tilde{\Gamma}_0 > \Gamma_{gl}; \\ \frac{\gamma_g\Gamma_{gl} + \gamma_l \left((\Gamma_0 - \Gamma_{gl}) + \sqrt{\Gamma_0^2 - \left(1 - \frac{\gamma_g}{\gamma_l}\right) (2\Gamma_0 - \Gamma_{gl})\Gamma_{gl}} \right)}{\gamma_g\Gamma_{gl} + \gamma_l \left((\tilde{\Gamma}_0 - \Gamma_{gl}) + \sqrt{\tilde{\Gamma}_0^2 - \left(1 - \frac{\gamma_g}{\gamma_l}\right) (2\tilde{\Gamma}_0 - \Gamma_{gl})\Gamma_{gl}} \right)}, & \text{если } 2\Gamma_0 > \Gamma_{gl}. \end{cases} \quad (4.3)$$

где $\tilde{\Gamma}_0 = \frac{\Gamma_0}{1 - \tilde{x}_c}$ – средняя поверхностная концентрация сурфактанта в застойной зоне. Кривые, рассчитанные из (4.3) для начальных концентраций, соответствующих экспериментальным данным, представлены на Рис.4.11.

Видно, что результаты расчетов хорошо согласуются с результатами экспериментов.

Здесь необходимо обсудить границы применимости полученной формулы. Во-первых, идеализированная изотерма хорошо описывает поведение слоя сурфактанта только вблизи фазового перехода на участке $0 < \Gamma/\Gamma_e \leq 0.42$. При больших концентрациях олеиновой кислоты зависимость становится нелинейной из-за уменьшения сжимаемости слоя. Несовпадение реальной и идеальной изотерм и является, скорее всего, причиной отклонений расчетной кривой от экспериментальных точек при сильном сжатии слоя с начальной концентрацией $\Gamma_0 = 0.26 \Gamma_e$. Во-вторых, идеализированная изотерма не предполагает формирование насыщенного монослоя с предельно возможной упаковкой молекул. Дальнейшее сжатие слоя в таком состоянии приводит к его коллапсу, при котором возникают многослойные структуры. Сжимаемость слоя в таком состоянии, как правило, существенно возрастает, что также должно сказаться на виде зависимости $\tilde{x}_c(E)$. Таким образом, при приближении параметра к нулю расчетная кривая будет все больше отклоняться от экспериментальных данных. Однако проверить это в данной постановке эксперимента мы не в состоянии в силу ограничений мощности источника тепла. Учитывая, что температурный коэффициент поверхностного натяжения для воды $\gamma_T \approx 0.15 \text{ дин/см} \cdot \text{K}$, теоретически при $\Delta T = 100 \text{ K}$ можно достичь перепада поверхностного натяжения $\Delta\sigma \approx 15 \text{ дин/см}$, что соответствует середине жидко-расширенного участка и далеко от состояния насыщенного монослоя. Таким образом, в пределах мощности использованного источника формула вполне применима.

4.3. Обсуждение результатов.

Сравним полученные экспериментальные результаты с результатами имеющихся теоретических исследований. В работе Карпентера и Хомси [112] была получена формула, связывающая положение застойной точки с величиной параметра упругости $\tilde{x}_c = 1 - \sqrt{E}$. На Рис.4.11 кривая, рассчитанная по данной формуле, представлена штриховой линией. При срав-

нении необходимо учесть, что авторы использовали самое простое уравнение состояния для сурфактанта, предполагающее линейную связь вида $\pi = \gamma \Gamma$, что соответствует газообразному состоянию слоя. Видно, что теоретическая зависимость далека от корректного описания экспериментальных данных даже на участке, где слой сурфактанта оставался в газообразном состоянии при сжатии (первые семь точек на экспериментальной кривой, соответствующей $\Gamma_0 = 0.1 \Gamma_e$), в то время как формула (4.3) дает $x_c = 1 - E$. Расхождение связано с неправильной оценкой вкладов конвективного и теплопроводного механизмов в процессы теплопереноса. Работая в приближении теории смазки (lubrication approximation), авторы пренебрегли слабым, по их мнению, конвективным теплопереносом, оставив только слагаемое, отвечающее за кондуктивный перенос тепла. В результате, градиент температуры на поверхности остается постоянным даже после появления свободного от сурфактанта участка. В то же время эксперименты, представленные в данной главе, ясно демонстрируют наличие излома на профиле температуры после открытия «полыньи», что, безусловно, вызвано существенным вкладом термокапиллярной конвекции в перенос тепла. Учет данного механизма в теоретической модели [13] позволил получить аналитические выражения для зависимости $\tilde{x}_c(E)$, прекрасно описывающие результаты экспериментов.

Следует отметить тот факт, что установившееся течение, наблюдаемое в экспериментах, всегда оставалось стационарным, что, вообще говоря, до проведения данного исследования считалось неочевидным. Так при исследовании влияния пленки нерастворимого сурфактанта на порог устойчивости в задаче Рэлея-Бенара [104] было сделано предположение, что наиболее опасными должны быть колебательные возмущения, как результат конкуренции термокапиллярного и концентрационно-капиллярного механизмов. Позднее [105] теоретически было показано, что в достаточно разреженных слоях сосуществование на поверхности свободной и застойной зон всегда приводит к развитию колебательного движения жидкости. Причина столь существенных расхождений с результатами экспериментов лежит, по нашему мнению, в неправильной оценке скорости диффузионных процессов на границе раздела. Как правило, в теоретических исследовани-

ях коэффициент поверхностной диффузии берется равным коэффициенту объемной диффузии, т.е. $D_s \sim 10^{-6} \text{ см}^2/\text{с}$. Такое занижение величины данного параметра на 3-4 порядка позволяет пренебречь в теории диффузионным массопереносом по отношению к адвективному, что и приводит к появлению жесткой обратной связи между концентрационным и термокапиллярным механизмами и, как следствие, развитию колебательного сценария. В этой связи представляет интерес проведение теоретических исследований с корректным значением коэффициента поверхностной диффузии $D_s \sim (10^{-3} - 10^{-2}) \text{ см}^2/\text{с}$, найденным в настоящем исследовании для газообразных слоев сурфактанта.

5. Конвекция Марангони в плоском горизонтальном слое при наличии наклонного градиента температуры

Среди конвективных задач, рассматриваемых в прямоугольной геометрии, модель плоского горизонтального слоя является наиболее популярной у исследователей и наиболее изученной на сегодняшний день. При наличии свободной верхней границы конвективное течение в слое жидкости генерируется не только свободноконвективным, но и Марангониевским механизмом. В данной главе будет рассмотрен тепловой вариант задачи, когда неустойчивое распределение плотности в слое жидкости обусловлено его неоднородным нагревом. В зависимости от направления градиента температуры относительно слоя жидкости различают две независимые постановки, отличающиеся как условиями развития неустойчивости, так и структурой возникающего конвективного течения.

Если градиент температуры перпендикулярен слою жидкости, говорят о задаче Бенара-Марангони. В этом случае подогреваемый снизу слой становится неустойчивым только по достижении разности температур на границах слоя некоторого порогового значения. История задачи восходит к экспериментам Бенара [149, 150], наблюдавшего формирование конвективных ячеек гексагональной формы в слое расплава спермацета. Первоначально данный эффект был ошибочно приписан Рэлеем действию сил плавучести [151]. Позднее Блок [152] экспериментально показал, что основной причиной развития неустойчивости является термокапиллярный механизм. Данный вывод был подтвержден в теоретическом исследовании Пирсона [102], показавшего, что неустойчивость развивается и в отсутствие гравитации по достижении числом Марангони критического значения $Ma_{cr} \approx 80$. Более поздние эксперименты в условиях невесомости подтвердили данный вывод [153]. Исследования с учетом силы тяжести [103, 154] показали, что термокапиллярный механизм является определяющим в слоях толщиной несколько миллиметров, в то время как в более

толстых слоях неустойчивость развивается, в основном, за счет термогравитационного механизма. Относительный вклад механизмов в формирование конвективного течения отражает динамическое число Бонда (см. уравнение 1.1), равное отношению чисел Рэлея и Марангони. Течение, возникающее в надкритической области, имеет структуру гексагональных конвективных ячеек с характерным размером $\lambda \approx 3d$. При увеличении числа Марангони данная структура остается устойчивой, лишь немного меняясь в размерах [155, 156]. В области больших надкритичностей гексагональные ячейки становятся неустойчивыми, сменяясь квадратными [157, 158].

Если градиент температуры направлен вдоль слоя, то течение возникает беспороговым образом, т.е. при сколь угодно малом значении числа Марангони. В этом случае говорят о неустойчивости Марангони или термокапиллярной неустойчивости. В результате в слое возникает двумерное, стационарное адвективное движение [27]. Исследования устойчивости такого течения в отсутствие гравитации показали [29], что, в зависимости от величины числа Прандтля, в слое развиваются два типа вторичных течений. При $Pr \leq O(1)$ основное течение теряет устойчивость по отношению к гидротермическим волнам, распространяющимся под некоторым углом к градиенту температуры. В жидкостях с большими числами Прандтля наиболее опасными становятся возмущения в виде продольных, стационарных конвективных валов. Оба типа вторичных течений были позднее обнаружены в наземных экспериментах в очень тонких слоях жидкости, что позволяло минимизировать влияние силы тяжести [39, 41, 42, 45, 159, 160]. В более толстых слоях объемные силы меняют сценарий неустойчивости основного течения [41, 42, 161]. При $Bo_{dyn} > 0.2$ наиболее опасными становятся возмущения в виде стационарных поперечных валов, развивающихся на границе термокапиллярного и возвратного течений.

Описанные выше ситуации являются идеализированными, и их реализация в лабораторных условиях требует применения специальных экспериментальных методик. Например, при исследовании неустойчивости Бенара-Марангони теплопоток через боковые границы, разница теплопроводностей материала стенок и жидкости, а также наличие мениска могут приводить к формированию горизонтального градиента температуры в

пристеночных областях. В задаче о термокапиллярной неустойчивости теплоотдача со свободной поверхности, обусловленная, например, испарением, генерирует нежелательный вертикальный градиент температуры. В реальных технологических процессах наличие одновременно вертикального и горизонтального градиентов температуры является, скорее, нормой. Так, например, при выращивании кристаллов методом Бриджмена в открытом лотке или методом Чохральского интенсивная теплоотдача от свободной поверхности расплава за счет излучения всегда приводит к формированию вертикального перепада температуры в слое. В итоге, течение расплава развивается под действием наклонного градиента температуры. Наличие вертикальной составляющей, не учитываемой, как правило, в теоретических исследованиях и численных экспериментах, является, скорее всего, причиной расхождений с результатами, наблюдаемыми в реальных процессах. Так, например, при выращивании кристаллов методом Чохральского на поверхности расплава наблюдаются продольные конвективные структуры [48, 162] или относительно быстро движущиеся в радиальном направлении конвективные ячейки [163]. В исследованиях отмечается, что развитие таких структур негативно сказывается на структуре и качестве выращиваемого кристалла. Малый характерный размер таких структур указывает на то, что они существуют в тонком приповерхностном слое. Адекватного объяснения причин появления данных структур в рамках теоретических исследований, учитывающих только действие продольного градиента температуры, не было дано. Между тем, как показывают представленные в данной главе результаты исследований, учет наклонной ориентации градиента температуры по отношению к слою жидкости может объяснить появление подобных конвективных структур.

Ранее такая ситуация была исследована теоретически [164, 165]. Было показано, что наличие термокапиллярного течения оказывает стабилизирующее влияние на неустойчивость Бенара-Марангони. По мере роста продольного градиента температуры сначала возникают движущиеся с термокапиллярным течением ячейки Бенара-Марангони, вытянутые вдоль направления движения, которые затем сменяются продольными валами. При ещё большем горизонтальном перепаде температуры в слое устанавли-

ливается устойчивое адвективное термокапиллярное течение. Несмотря на то, что авторы исследовали задачу в отсутствие силы тяжести, полученные ими результаты нашли качественное подтверждение в экспериментальном исследовании [166], авторы которого также обнаружили переход от движущихся ячеек Бенара-Марангони к продольным конвективным валам и двумерному термокапиллярному течению при увеличении горизонтального градиента температуры. Эксперименты проводились в очень тонких слоях, что позволило минимизировать влияние Рэлеевского механизма и приблизиться по постановке к теоретической модели. Более толстые слои жидкости, моделирующие реальную ситуацию в технологическом процессе, не были рассмотрены. Следует также отметить, что авторам не удалось избежать влияния пристеночных эффектов, связанных с нарушениями температурных условий вблизи боковых стенок. На изображениях структуры течения (Рис.2 из [166]) хорошо видно, что паразитные конвективные структуры распространяются далеко вглубь слоя, оставляя невозмущенной лишь небольшую область в центре. О существенном влиянии пристеночных неоднородностей температуры говорит и тот факт, что авторами была обнаружена область параметров, внутри которой конвективное течение не возникало. Отсутствие движения жидкости при ненулевом горизонтальном градиенте температуры явно указывает на наличие неоднородных температурных условий вдоль слоя.

В данной главе представлены результаты экспериментального исследования неустойчивости плоского горизонтального слоя жидкости под действием наклонного градиента температуры. В отличие от предыдущих исследований, специальная конструкция экспериментальной установки и набор экспериментальных методик позволили избежать пристеночных эффектов и исследовать систему в однородных температурных вдоль всего слоя. Изменение толщины слоя жидкости сделало возможным варьирование в широких пределах величины динамического числа Бонда, что позволило проследить эволюцию системы по мере изменения относительного вклада термокапиллярного и термогравитационного механизмов и обнаружить эффект вытеснения неустойчивости в приповерхностную область, что ранее не наблюдалось в других исследованиях.

5.1. Экспериментальная установка и методики измерений.

Схема экспериментальной установки представлена на Рис.5.1. Слой жидкости 5, толщина которого варьировалась в диапазоне от 1.00 до 6.00 мм, помещался в латунную прямоугольную кювету 1 с внутренними горизонтальными размерами полости 135×135 мм² и высотой бортиков 6 мм. Толщина дна кюветы составляла 5 мм. Кювета выставлялась в горизонтальное положение при помощи трех регулируемых опор (на схеме не указаны). В качестве рабочей жидкости использовалось силиконовое масло, основные характеристики которого указаны в **Таблице 5.1**.

Таблица 5.1. Физико-химические свойства силиконового масла, использованного в исследовании, при $t = 25^\circ\text{C}$.

Свойство	Величина
Плотность ρ , г/см ³	0.935
Кинематическая вязкость ν , 10^{-2} см ² /с	10
Температуропроводность χ , 10^{-4} см ² /с	9.77
Число Прандтля Pr	102
Поверхностное натяжение σ , дин/см	20.1
$d\sigma/dT$, 10^{-2} дин/см·К	6.8
Коэффициент теплового расширения, 10^{-3}K^{-1}	1.08

Над свободной поверхностью жидкости находился тонкий слой воздуха, ограниченный сверху цилиндрической пластиной 6, изготовленной из прозрачного монокристалла сапфира, толщиной 10 мм и диаметром 125 мм. Пластина была вклеена в круглое отверстие верхней прямоугольной крышки из поликарбоната 11, опирающейся на бортики латунной кюветы через специальную прокладку. Варьирование толщины применяемой прокладки позволяло сохранять постоянную 0.5 мм толщину воздушного слоя между свободной поверхностью жидкости и сапфировой пластиной при изменении толщины слоя жидкости. Точность определения толщины слоя жидкости и воздушного зазора составляла 0.01 мм. Температурные условия на верхней и нижней твердых границах задавались при помощи четырех термостатов, вода от которых прокачивалась через теплообменники 7 и 8 (см. Рис.5.1),

приклеенные по краям пластины из сапфира, и каналы 2 и 3, сделанные в дне латунной кюветы.

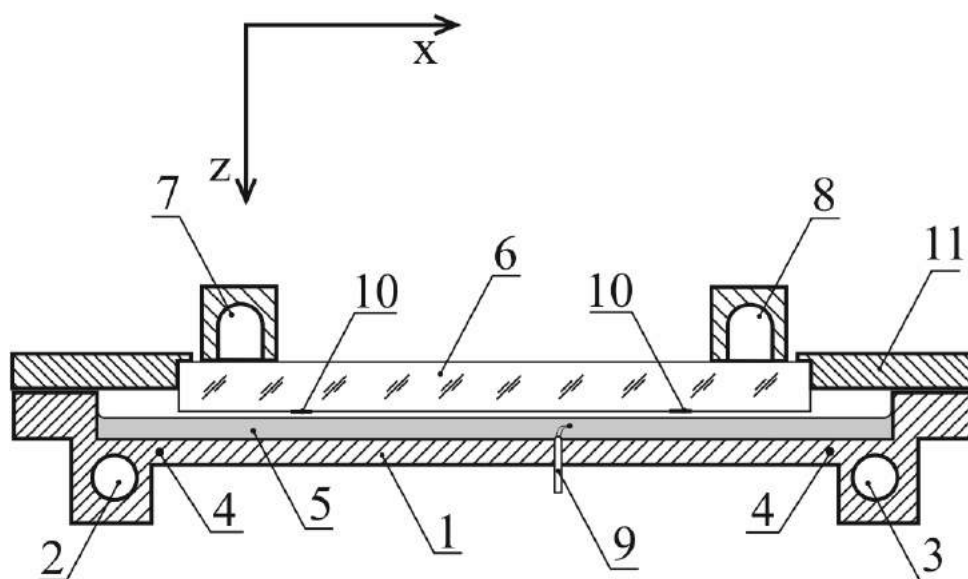


Рис. 5.1. Схема экспериментальной установки. Цифрами на схеме обозначены: 1 – латунная прямоугольная кювета, 2 и 3 – каналы, 4 – термопары, 5 – слой жидкости, 6 – сапфи́ровая пластина, 7 и 8 – теплообменники, 9 – подвижная термопара, 10 – полоски фольги, 11 – крышка из поликарбоната

Две *Ni-Cr-Ni* термопары, спаи которых были расположены в дне латунной кюветы (позиция 4 на Рис.5.1), применялись для измерения температуры нижней границы вблизи теплообменников. Температура поверхности сапфи́ровой пластины измерялась с помощью инфракрасной камеры SC 1000 IR (Inframetrics Inc., North Billarica, MA, USA). Для этого на нижнюю поверхность были приклеены две полоски тонкой 0.01 мм почерненной металлической фольги размером $12 \times 5 \text{ мм}^2$ (позиция 10 на Рис.5.1). Наблюдения велись непосредственно сквозь сапфир, прозрачный в инфракрасном диапазоне. Камера была заранее откалибрована путем помещения пластины в среду с известной температурой. Измеренные таким образом температуры T_1, T_2 (позиция 4 на Рис.5.1) и T_3, T_4 (позиция 10 на Рис.5.1) были использованы для вычисления горизонтального градиента температуры вдоль нижней $(grad_x T)_b$ и верхней $(grad_x T)_s$ границы соответственно:

$$(grad_x T)_b = \frac{T_1 - T_2}{L_b}$$

$$(grad_x T)_s = \frac{T_3 - T_4}{L_s}$$

где $L_b = 105$ мм и $L_s = 55$ мм – расстояния между точками измерения температуры на латунной и сапфировой границе соответственно. Величина горизонтального градиента на обеих границах всегда задавалась одинаковой и была использована для вычисления горизонтального числа Марангони, определяемого как:

$$Ma_{hor} = \frac{\sigma_T (grad_x T) d^2}{\eta \chi}$$

Здесь σ_T – температурный коэффициент поверхностного натяжения, d – толщина слоя жидкости, η – коэффициент динамической вязкости жидкости, χ – коэффициент температуропроводности жидкости.

Для формирования наклонного градиента температуры в слое жидкости создавался также вертикальный перепад температуры. Для этого сапфировая пластина охлаждалась относительно нижней границы на величину Θ одинаковую для каждой продольной координаты. Таким образом, распределение температуры на горизонтальных границах представляло собой два параллельных профиля, сдвинутых друг относительно друга на заданную величину Θ . Величина вертикального температурного перепада на самом слое жидкости вычислялась следующим образом:

$$\Delta T_{ver} = \frac{\Theta}{1 + \lambda_f d_{air} / \lambda_{air} d_f} \quad (5.1)$$

где λ_f и λ_{air} – коэффициенты теплопроводности жидкости и воздуха соответственно, d_f и d_{air} – толщины слоя жидкости и воздуха соответственно. Данная формула применима только в случае чисто молекулярного механизма передачи тепла и/или при наличии адвективного течения, когда скорость движения жидкости в каждой точке перпендикулярна вектору переноса тепла. В рассматриваемом случае горизонтальная составляющая градиента температуры приводит к возникновению именно такого течения.

С другой стороны, наличие вертикальной составляющей градиента температуры, направленной по направлению силы тяжести, может приводить к развитию неустойчивости Бенара-Марангони и, как следствие, формированию конвективных ячеек, способных увеличить интенсивность переноса тепла поперек слоя. В такой ситуации формула (5.1) становится некорректной. Однако, как будет видно из представленного ниже материала, такое конвективное движение оказывается слабым в силу относительно небольших величин вертикального числа Марангони, что позволяет без большой ошибки применять формулу (5.1). Вычисленный вертикальный перепад температуры в слое жидкости использовался для расчета вертикального числа Марангони:

$$Ma_{ver} = \frac{\sigma_T \Delta T_{ver} d}{\eta \chi}.$$

Часть слоя жидкости, расположенная в проекции между верхними теплообменниками, была использована для наблюдений в экспериментах. Теплообменники сапфировой пластины имеют длину 65 мм и расположены на расстоянии 60 мм, в то время как горизонтальный размер слоя жидкости составляет 135×135 мм². В такой ситуации периферийная часть слоя жидкости играет роль буферной зоны, не дающей паразитным течениям, развивающимся вследствие пристеночных эффектов, проникать в исследуемую область. Известно [28, 167–171], что в экспериментах с кюветами конечного размера различного типа неустойчивости могут развиваться вблизи боковых стенок. Можно выделить два основных механизма формирования таких течений. Первый связан со скачком коэффициента теплопроводности на границе жидкости и материала боковой стенки, что приводит к появлению паразитного горизонтального градиента температуры. В задаче Рэлея-Бенара это является причиной формирования пристеночных конвективных валов в подкритичной области параметров [168]. В случае продольного градиента температуры это может приводить к неустойчивости основного течения в местах поворота течения у боковой стенки [171]. Другой причиной появления пристеночной неустойчивости является наличие менисковой зоны. Вышеперечисленные неустойчивости являются причиной появления паразитных конвективных структур в пристеночных областях, способных

повлиять как на устойчивость основного состояния, так и существенно изменить структуру вторичного течения во всем слое жидкости. Экспериментальная установка была спроектирована так, чтобы исследуемая часть слоя была отделена от боковых стенок специальной буферной зоной, где нежелательные структуры могли бы развиваться, не проникая в основную часть слоя. Обзор литературы [28, 167–171] показывает, что такие паразитные структуры проникают в слой на расстояние $\delta \leq 3d$. Продольный размер буферной зоны в рассматриваемом случае равнялся 35 мм, что составляло 35 толщин слоя в случае $d = 1$ мм и 6 толщин в случае $d = 6$ мм. Это означает, что паразитные пристеночные структуры развивались на значительном расстоянии от исследуемой зоны, не влияя на устойчивость основного состояния, исследуемого в работе. Дополнительным подтверждением данного утверждения является тот факт, что новые конвективные структуры, наблюдавшиеся в описываемых экспериментах, всегда развивались одновременно по всей площади исследуемой области, а не вблизи границ. Наличие буферной зоны позволяло также избежать влияния боковых границ, связанного с конвективным переносом возмущений, зарождающихся в пристеночной области, в исследуемую область. Такие возмущения могут переноситься достаточно глубоко в центральную область относительно быстрым термокапиллярным течением, также влияя на устойчивость основного состояния. Отсутствие данного эффекта в представленных экспериментах объясняется наличием изотермических участков поверхности жидкости, расположенных за пределами сапфировой пластины, что делает невозможной конвективную связанность исследуемой и буферной зон.

Для уменьшения влияния окружающей среды, связанного с теплопотерями от экспериментальной установки, все эксперименты проводились при постоянной средней температуре слоя $\bar{T} = (T_1 + T_2 + T_3 + T_4)/4$, равной температуре в лаборатории.

Наблюдения структуры конвективного течения в слое жидкости производились через прозрачную сапфировую пластину. Для визуализации были применены две методики. Первая заключалась в добавлении визуализирующих частиц алюминиевой пудры в исследуемую жидкость. Для получения общей картины течения слой жидкости равномерно освещался

через верхнюю пластину источником рассеянного белого света. Для повышения контрастности поверхность латунной кюветы была почернена в процессе анодирования. При необходимости получения двумерных вертикальных срезов течения применялась стандартная методика подсветки световым ножом. Для создания последнего использовался светодиодный лазер с длиной волны 532 нм и фокусирующая система. Изображение регистрировалось при помощи видеокамеры. К сожалению, использование визуализирующих частиц в данной задаче имеет ряд недостатков, ограничивающих применение метода. Во-первых, осаждение более плотных по отношению к жидкости частиц быстро приводит к обеднению наиболее интересного приповерхностного слоя, а также понижению контрастности изображения за счет покрытия отражающими свет частицами почерненного дна. Наиболее сильно это проявляется в слоях малой толщины. Во-вторых, относительно малая скорость конвективного движения в структурах ячеистого типа требует больших выдержек для прорисовки конвективной структуры. С другой стороны, как будет показано ниже, конвективные ячейки в данной задаче всегда движутся вдоль слоя. Сложение двух движений на кадрах с длинной выдержкой приводит к размытию структуры течения. Второй метод визуализации конвективных структур, оказавшийся более предпочтительным в данной задаче, состоит в регистрации поля температуры на поверхности жидкости при помощи инфракрасной видеокамеры. Восходящее движение жидкости в центре каждой ячейки имеет большую температуру, чем нисходящее течение на ее границах, что уверенно регистрируется ИК камерой с хорошим разрешением по температуре, позволяя фиксировать момент появления конвективных ячеек, а также скорость их дрейфа в термокапиллярном потоке. В экспериментах была использована камера SC 1000 IR (Inframetrics Inc., North Billerica, MA, USA), имеющая разрешение по температуре 0.07 К при 30°C и матрицу 256 × 256 пикселей, чувствительную в диапазоне длин волн 3.5 – 5.0 мкм. Пространственное разрешение камеры при выбранном в экспериментах увеличении составляло 4 пиксела/мм. При указанном диапазоне чувствительности камера измеряет температуру приповерхностного слоя жидкости толщиной около 0.2 мм. При небольших перепадах температуры в центре и на краях конвективной

ячейки, что характерно для слабых надкритичностей, применялась методика повышения контрастности, заключающаяся в объединении указанных выше методов визуализации. Идея базируется на известном факте ориентации твердых включений в потоке жидкости. Частицы алюминиевой пудры, имеющие форму плоских чешуек, выстраиваются по направлению потока. Течение ориентирует частицы параллельно свободной поверхности внутри конвективной ячейки и перпендикулярно свободной поверхности в области подъемного и опускного течений. При освещении поверхности жидкости источником ИК излучения в диапазоне чувствительности камеры свет, отраженный от частиц, ориентированных параллельно поверхности внутри ячейки, складывается на изображении с излучением от нагретой поверхности. В области подъемного и опускного течений отраженного излучения нет, так как частицы ориентированы перпендикулярно поверхности. В результате увеличивается разность интенсивностей между внутренней частью конвективной ячейки и ее краями, что повышает контрастность изображения. Освещение источником ИК излучения производилось только в момент регистрации видеоизображения, чтобы избежать нежелательного разогрева поверхности жидкости за счет поглощения света.

Конструкция экспериментальной установки предусматривала проведение прямых измерений температуры в объеме жидкости. Для этого через специальное отверстие в дне (позиция 9 на Рис.5.1) латунной кюветы заводилась *Ni-Cr-Ni* термопара (провода 25 мкм), вертикальное положение спая которой могло меняться с точностью 0.01 мм. Измерения температуры вдоль поперечной слою координаты позволяло восстанавливать вертикальные профили температуры. В конвективных режимах, где наблюдались дрейфующие в потоке конвективные ячейки, термопара применялась также для измерения скорости дрейфа. Зная длину волны λ , измеренную в ходе наблюдений ИК камерой, и период изменений температуры τ вследствие прохождения ячеек через спай термопары, можно вычислить скорость конвективных ячеек $v_D = \lambda/\tau$.

В ходе проведения экспериментов задавалась величина продольного градиента температуры, вертикального перепада температуры и толщина слоя жидкости, что позволяло менять вертикальное и горизонтальное чис-

ла Марангони и динамическое число Бонда. В каждом эксперименте при фиксированных безразмерных параметрах проводилось наблюдение общей структуры, измерение пространственно-временных характеристик конвективного течения и измерение вертикального температурного профиля.

5.2. Результаты экспериментов.

5.2.1. Общий обзор структуры течения.

Наблюдения показали, что структура конвективного течения существенно зависит от величины всех трех безразмерных параметров, указанных выше. На Рис.5.2 приведены изображения всех конвективных структур, наблюдаемых в задаче при различных соотношениях параметров. Представленные режимы реализованы при фиксированных значениях продольной составляющей градиента температуры $grad_x T = 1.9 \text{ К/см}$ и вертикального перепада температуры $\Delta T_{ver} = 5.8 \text{ К}$, но при различных значениях толщины слоя жидкости. Необходимо заметить, что все три безразмерных параметра меняются на фотографиях, представленных на Рис.5.2. Как будет видно ниже, увеличение толщины при неизменных $grad_x T$ и ΔT_{ver} позволяет выстроить траекторию на карте режимов, проходящую через все области. С другой стороны, результаты, представленные на Рис.5.2, максимально приближены к условиям, имеющим место в процессе выращивания кристалла методом Чохральского, где температурные условия в слое остаются почти неизменными, в то время как толщина слоя расплава может меняться в процессе роста кристалла.

При небольших значениях толщины слоя в жидкости развивается ячеистая конвективная структура, проникающая на всю глубину слоя (Рис.5.2а-в). Пространственная периодичность $\lambda \approx 3d$ и форма ячеек соответствуют структурам, наблюдаемым в случае неустойчивости Бенара-Марангони. Ячейки вытянуты в направлении термокапиллярного течения и медленно движутся вдоль продольного градиента температуры в направлении, зависящем от толщины слоя и обоих чисел Марангони. Данная зависимость будет более подробно обсуждена ниже. Режим течения, представленный на Рис.5.2а-в, далее будем называть *дрейфующие ячейки (ДЯ)*.

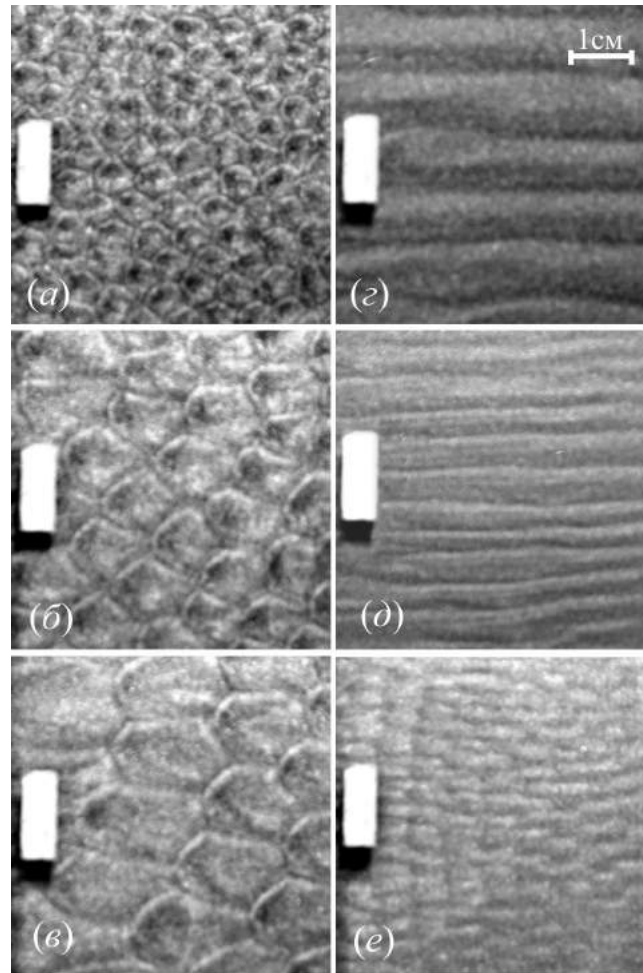


Рис. 5.2. Режимы конвективного течения, наблюдаемые в эксперименте при фиксированных $grad_x T = 1.9 \text{ К/см}$ и $\Delta T_{ver} = 5.8 \text{ К}$ по мере увеличения толщины слоя жидкости: (а) – дрейфующие ячейки Бенара-Марангони ($d = 0.17 \text{ см}$), (б) – дрейфующие ячейки Бенара-Марангони ($d = 0.25 \text{ см}$), (а) – дрейфующие ячейки Бенара-Марангони ($d = 0.29 \text{ см}$), (а) – продольные валы ($d = 0.31 \text{ см}$), (а) – поверхностные продольные валы ($d = 0.34 \text{ см}$), (а) – поверхностные дрейфующие ячейки ($d = 0.40 \text{ см}$).

По мере увеличения толщины слоя жидкости ячейки все более удлиняются в направлении движения. При достижении некоторой толщины в слое устанавливается новый режим течения в форме *продольных конвективных валов (ПВ)* (Рис.5.2г). Дальнейшее увеличение слоя приводит к появлению структуры, внешне схожей с предыдущей, т.е. в форме продольных валов, но с гораздо меньшим поперечным размером. Длина волны валов меняется скачком, становясь $\lambda \approx d$, в то время как для предыдущего режимов дрейфующих ячеек и продольных валов характерно $\lambda \approx 3d$. При толщине

$d > 0.35$ см конвективные валы распадаются на ячейки с $\lambda \approx d$, движущиеся всегда в направлении термокапиллярного течения, т.е. от горячего края к холодному, со сравнимой скоростью. Переход от относительно крупных конвективных структур к более мелким сопровождается скачкообразным изменением не только в характерной длине волны, но и в скорости дрейфа ячеек. Этот факт проиллюстрирован на Рис.5.3, где представлена зависимость скорости движения конвективных ячеек от толщины слоя жидкости.

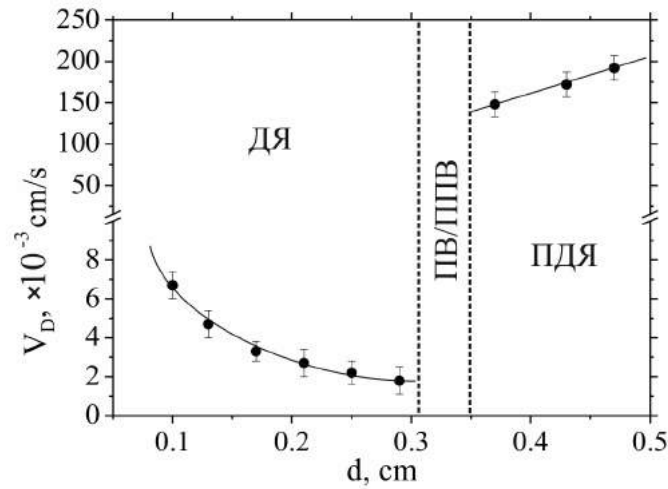


Рис. 5.3. Зависимость скорости движения конвективных ячеек от толщины слоя жидкости при фиксированных $grad_x T = 1.9 \text{ K/см}$ и $\Delta T_{ver} = 5.8 \text{ K}$.

Видно, что при малой толщине слоя скорость дрейфа составляет по порядку $V_D \sim 10^{-3}$ см/с и уменьшается с ростом глубины жидкости. При толщине $d \sim 0.35$ см наблюдается резкий скачок скорости до значений $V_D \sim 0.1 - 0.2$ см/с, что примерно одного порядка со скоростью термокапиллярного течения на поверхности. Видно также, что скорость дрейфа в данном конвективном режиме возрастает при увеличении толщины слоя. Наблюдаемый в экспериментах переход к меньшим длинам волн, сопровождаемый резким, на два порядка, увеличением скорости, указывает на существование данных конвективных структур только в приповерхностном слое, что будет показано более детально ниже. В связи с этим конвективные режимы, характеризующиеся коротковолновыми продольными валами и движущимися ячейками, далее мы будем определять, как *поверхностные*

продольные валы (ППВ) (Рис.5.2д) и поверхностные дрейфующий ячейки (ПДЯ) (Рис.5.2е), соответственно.

5.2.2. Карты режимов.

Появление описанных выше конвективных режимов зависит от величины всех трех безразмерных параметров, каждый из которых может меняться независимо. Для систематизации полученных результатов были построены карты режимов в координатах $Ma_{hor} - Ma_{ver}$ при различных значениях динамического числа Бонда. На Рис.5.4 представлены три таких карты для $Bo_{dyn} = 1.8$ (Рис.5.4а), $Bo_{dyn} = 5.6$ (Рис.5.4б) и $Bo_{dyn} = 16.4$ (Рис.5.4в), что соответствует увеличению вклада термогравитационного механизма в формирование конвективного течения в слое почти на порядок. Вдоль оси $Ma_{ver} = 0$, т.е. при наличии только горизонтальной компоненты температурного градиента, наблюдалось двумерное, *стационарное термокапиллярное течение (ТТ)* с возвратным течением у дна. Так как диапазон использованных Ma_{hor} был выбран заведомо ниже критического значения, то такое течение оставалось устойчивым при всех значениях Ma_{hor} и Bo_{dyn} , реализуемых в эксперименте. В случае наличия только вертикальной компоненты температурного градиента, что соответствует оси $Ma_{hor} = 0$, слой жидкости находился в состоянии механического равновесия при небольших значениях вертикального числа Марангони. При достижении критического значения $Ma_{ver}^* \approx 80$ в слое развивалась неустойчивость Бенара-Марангони, что приводило к формированию гексагональных конвективных ячеек с длиной волны $\lambda \sim 3d$. В общем случае, когда оба числа Марангони не равны нулю, реализовывались различные типы течения, представленные на Рис.5.4, в зависимости от динамического числа Бонда.

Карта режимов, соответствующая наименьшему $Bo_{dyn} = 1.8$, представлена на Рис.5.4а. Видно, что увеличение вертикального числа Марангони до некоторого критического значения при фиксированном горизонтальном числе Марангони приводит к неустойчивости термокапиллярного течения. В результате наступает неустойчивость Бенара-Марангони, приводящая к формированию продольных конвективных валов, которые

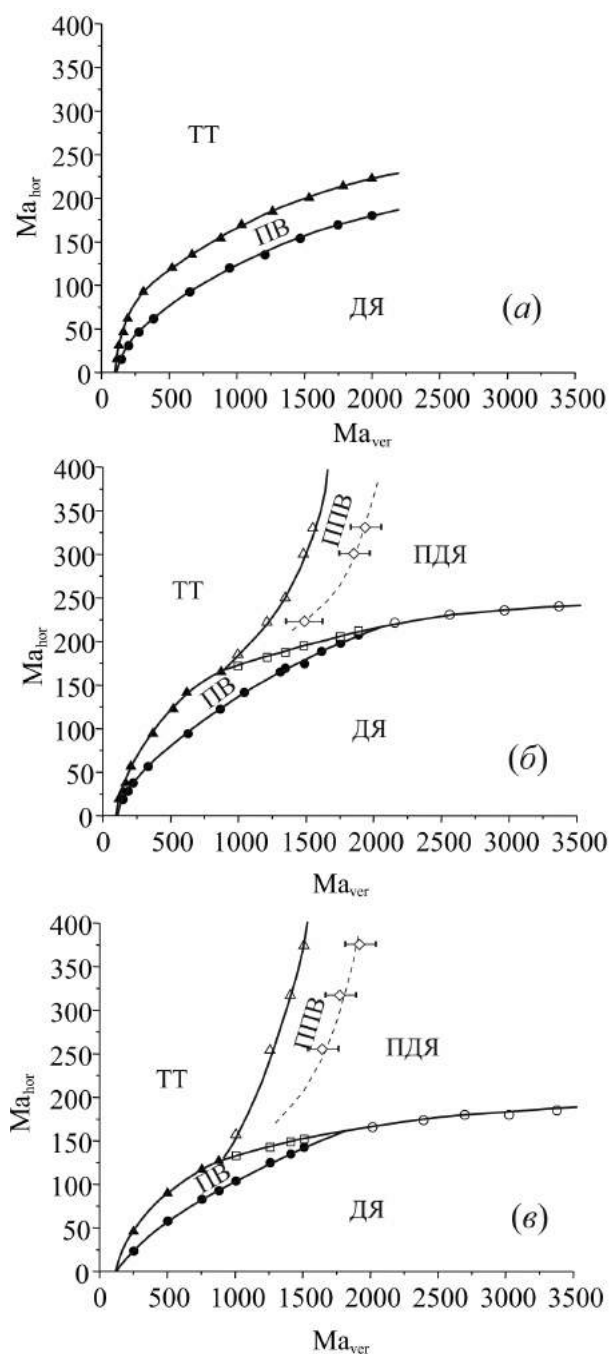


Рис. 5.4. Карта режимов течения в координатах горизонтального и вертикального чисел Марангони при различных значениях динамического числа Бонда: (а) – $Bo_{dyn} = 1.8$ ($d = 0.20$ см), (б) – $Bo_{dyn} = 5.6$ ($d = 0.35$ см), (в) – $Bo_{dyn} = 16.4$ ($d = 0.60$ см).

затем сменяются режимом дрейфующих ячеек при дальнейшем увеличении Ma_{ver} . Очевидно, что наличие продольного градиента температуры оказывает стабилизирующее влияние на подогреваемый снизу слой. Действительно, увеличение градиента температуры вдоль слоя, а, значит, и

Ma_{hor} , приводит к увеличению критического вертикального числа Марангони, при котором слой становится неустойчивым по отношению неустойчивости Бенара-Марангони. Известное для изначально неподвижного подогреваемого снизу слоя критическое число $Ma_{ver}^* \approx 80$ увеличивается на порядок при $Ma_{hor} = 150$. При наличии продольного градиента температуры ячейчатые структуры появляются сначала в виде продольных валов и только затем, при увеличении вертикального перепада температуры, в виде ячеек. Причем зона существования продольных валов быстро расширяется при увеличении горизонтального градиента температуры. В целом, при всех $Ma_{hor} > 0$ увеличение Ma_{ver} реализует следующий сценарий смены режимов $TT \rightarrow ПВ \rightarrow ДЯ$.

При увеличении числа Бонда ($Bo_{dyn} = 5.6$, Рис.5.4б) влияние термогравитационного механизма становится больше, что существенно образом сказывается на карте режимов. При $Ma_{hor} < 160$ наблюдается прежний сценарий смены режимов $TT \rightarrow ПВ \rightarrow ДЯ$ при увеличении вертикального числа Марангони. В области больших горизонтальных чисел Марангони зона существования термокапиллярного течения существенно сокращается за счет появления режимов поверхностных валов и поверхностных дрейфующих ячеек. Причем появление данных режимов сокращает и зоны существования неустойчивости Бенара-Марангони. При $Ma_{hor} > 250$ наблюдается только сценарий смены режимов $TT \rightarrow ППВ \rightarrow ПДЯ$. Зона существования продольных валов превращается в замкнутую область, локализованную в области малых чисел Марангони. Дальнейшее увеличение числа Бонда ($Bo_{dyn} = 16.4$, Рис.5.4в) приводит к ещё большему расширению областей существования поверхностных конвективных структур за счет уменьшения зон термокапиллярного течения и Бенаровских ячейчатых структур.

В целом, анализируя представленные на Рис.5.4 карты режимов, можно сделать следующие выводы. Во-первых, термокапиллярное течение оказывает стабилизирующий эффект на возникновение неустойчивости Бенара-Марангони, связанное с формированием дрейфующих ячеек и продольных валов. Критическое Ma_{ver} увеличивается на порядок при увеличении Ma_{hor} до 150. Эффект стабилизации может быть объяснен влиянием

термокапиллярного течения на вертикальное распределение температуры в слое жидкости. Подробнее этот вопрос будет рассмотрен в следующем разделе.

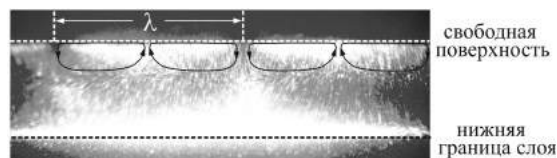
Во-вторых, наличие продольного градиента температуры изменяет наиболее опасную моду неустойчивости Бенара-Марангони, которая появляется сначала в виде продольных валов. Причем зона их существования быстро расширяется при увеличении горизонтального градиента температуры. Ячеистая структура становится наиболее опасной при больших значениях вертикального числа Марангони.

В третьих, рост вклада термогравитационного механизма конвекции приводит к качественным изменениям, связанным с появлением новых типов неустойчивости. При этом неустойчивым оказывается не весь слой, а только его приповерхностная часть, где возникают ячеистые структуры, подобные наблюдаемым при неустойчивости Бенара-Марангони. В следующем разделе представлены результаты исследования обнаруженных конвективных структур и предложен физический механизм их формирования.

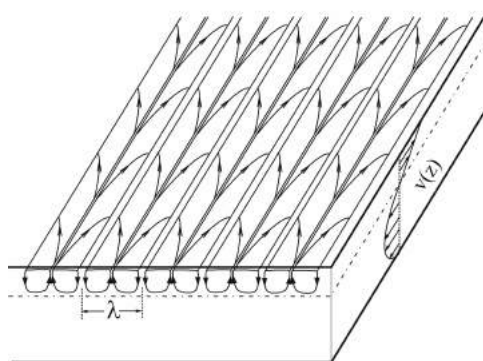
5.2.3. Приповерхностные режимы неустойчивости.

На Рис.5.5а приведена трековая фотография, полученная при вертикальном расположении светового ножа, ориентированного перпендикулярно термокапиллярному течению. Изображение получено в области параметров, соответствующей поверхностным валам. Анализ траектории движения визуализирующих частиц показывает, что ячейки развиваются не во всем слое, что характерно для неустойчивости Бенара-Марангони, а проникают в жидкость на глубину примерно $d/3$ от свободной поверхности. Видно также, что нижний край ячеек совпадает с плоскостью, разделяющей термокапиллярное и возвратное течение. На Рис.5.5б и Рис.5.5в представлена реконструкция структуры течения, наблюдающаяся в режимах поверхностных валов и поверхностных дрейфующих ячеек, соответственно. Первые представляют собой спиральные конвективные валы, вытянутые вдоль основного потока, и существуют только в поверхностном течении, не проникая в область возвратного течения. Увеличение вертикального числа Марангони приводит к развалу валов на конвективные ячейки, дрей-

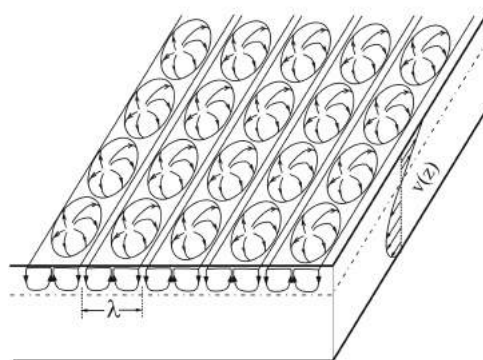
фьющие в приповерхностном течении со сравнимой скоростью. Так как ячейки существуют в сдвиговом потоке, то они оказываются слегка вытянуты вдоль основного течения. Отметим, что возвратное течение остается устойчивым, несмотря на наличие вертикального градиента температуры.



(a)



(б)



(в)

Рис. 5.5. (a) – визуализация структуры течения в режиме *ППВ* в вертикальном лазерном ноже, ориентированном перпендикулярно продольному градиенту температуры. (б) (в) – реконструкция структуры конвективного течения в *ППВ* и *ПДЯ* режимах.

Для выяснения физического механизма неустойчивости, ответственной за появление поверхностных конвективных структур были проведены измерения температуры в объеме жидкости. Вертикальные профили температуры, измеренные в слое толщиной $d = 0.35$ см ($Bo_{dyn} = 5.6$, карта

режимов Рис.5.4б) в области существования режима поверхностных дрейфующих ячеек, представлены на Рис.5.6. Измерения были проведены при фиксированной величине вертикального числа Марангони для трех различных значений горизонтального числа Марангони, наименьшее из которых выбрано чуть выше порогового значения $Ma_{hor}^* \approx 240$, соответствующего переходу от режима ДЯ к ПДЯ (см. Рис.5.4б). Вертикальная координата $z = 0$ совпадает со свободной поверхностью. Температура в объеме отсчитывается от температуры дна, принимаемой для всех представленных профилей за нулевую. Движение конвективных ячеек мимо неподвижной термопары в приповерхностной области приводит к колебаниям температуры. В этом случае на профиле указывается среднее значение температуры за период, а отрезок вблизи каждой точки показывает величину амплитуды колебаний. Штриховые линии на каждом профиле отмечают положение нижней границы ячеек и, следовательно, глубину их проникновения в слой, которые были получены как из температурных измерений, так и в ходе прямых наблюдений структуры течения в вертикальном световом ноже (см. Рис.5.5а).

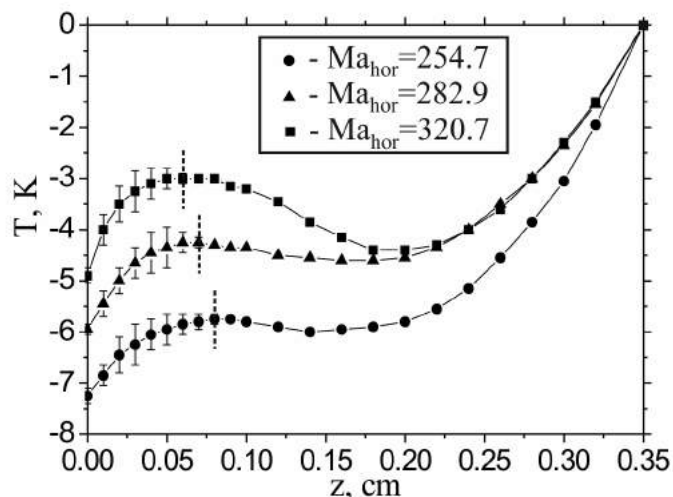


Рис. 5.6. Вертикальные профили температуры, измеренные в слое толщиной $d = 0.35$ см, в области существования режима поверхностных дрейфующих ячеек при $Ma_{ver} = 3370$ и различных значениях горизонтального числа Марангони (обозначены на легенде к графику).

Анализ зависимостей, представленных на Рис.5.6, показывает, что на каждом профиле температуры можно выделить три участка, различающихся направлением вертикального градиента температуры. В средней части слоя градиент температуры направлен навстречу силе тяжести, что соответствует устойчивой стратификации плотности. Причем в точке с $Ma_{hor} = 254$, расположенной чуть выше границы смены режимов $ДЯ \rightarrow ПДЯ$, середина слоя практически изотермическая. Таким образом, становится понятна причина стабилизации неустойчивости Бенарангони, которая объясняется влиянием термокапиллярного течения на вертикальное распределение температуры в слое жидкости. Наличие термокапиллярного течения на границе раздела от горячего края к холодному приводит к переносу более теплой жидкости вдоль поверхности, повышая температуру в приповерхностной области. И наоборот, возвратное течение, направленное от холодного края к горячему, понижает температуру в нижней, придонной части слоя. При некоторой критической интенсивности термокапиллярного течения, или критическом Ma_{hor} , в средней части слоя появляется изотермический, устойчивый участок. И хотя вертикальное число Марангони, оцененное по полному перепаду температуры на слое, остается выше критического, наличие устойчивого участка в середине слоя делает невозможным развитие ячеистой конвективной структуры во всем слое. Этот момент соответствует границе существования дрейфующих Бенаровских ячеек на карте режимов. Дальнейшее повышение Ma_{hor} приводит к увеличению отрицательного градиента температуры и, следовательно, ещё большей стабилизации средней части слоя.

Части слоя, примыкающие к горизонтальным границам и разделенные устойчивой средней частью, по-прежнему характеризуются неустойчивым распределением температуры. Направление градиента температуры вблизи дна совпадает с вектором силы тяжести, что потенциально может привести к возникновению термогравитационной конвекции. Максимальное значение числа Рэлея, оцененное для всех трех распределений температуры, составляет около 500, что меньше критического значения этого параметра, необходимого для развития в рассматриваемом подслое Рэлеевской неустойчивости. Таким образом, все возвратное течение оказывается

устойчивым в рассматриваемой области параметров.

Третий из рассматриваемых участков профиля температуры, расположенный вблизи поверхности в зоне существования термокапиллярного течения, также соответствует неустойчивой стратификации плотности. Учитывая наличие на одной из границ данного подслоя свободной поверхности, можно предположить развитие неустойчивости Бенара-Марангони в качестве объяснения обнаруженным в экспериментах поверхностным валам и ячейкам. В пользу такого предположения говорит и величина длины волны, измеренная для режимов поверхностных структур, которая составляет $\lambda \approx 3.1d_{TK}$, где d_{TK} – глубина проникновения ячеек, совпадающая в рассматриваемом случае с глубиной проникновения термокапиллярного течения. Полученное соотношение хорошо согласуется с характерной длиной волны, наблюдаемой обычно в задаче Бенара-Марангони. Для оценки возможного развития такого типа неустойчивости была рассчитана величина локального вертикального числа Марангони для трех профилей температуры, представленных на Рис.5.6. Локальный перепад температуры на приповерхностном подслое, в котором существует термокапиллярное течение, и его толщина были использованы для расчетов.

$$\left. \begin{array}{l} Ma_{hor} = 254 \\ \delta T = 1.5 \text{ K} \\ \delta d = 0.08 \text{ см} \end{array} \right\} \rightarrow Ma_{ver}^{local} = 92.4$$

$$\left. \begin{array}{l} Ma_{hor} = 283 \\ \delta T = 1.7 \text{ K} \\ \delta d = 0.07 \text{ см} \end{array} \right\} \rightarrow Ma_{ver}^{local} = 91.6$$

$$\left. \begin{array}{l} Ma_{hor} = 321 \\ \delta T = 1.9 \text{ K} \\ \delta d = 0.06 \text{ см} \end{array} \right\} \rightarrow Ma_{ver}^{local} = 87.8$$

Видно, что для всех трех профилей величина локального вертикального числа Марангони превышает пороговое значение $Ma_{ver}^* \approx 80$, необходимое для развития в приповерхностном подслое неустойчивости Бенара-Марангони. Таким образом, данный тип неустойчивости ответственен за

формирование структур в виде поверхностных валов и поверхностных дрейфующих ячеек, обнаруженных в экспериментах.

Представленный сценарий возникновения неустойчивости хорошо согласуется с результатами исследования пространственно-временных характеристик поверхностных конвективных структур. На Рис.5.7 представлены зависимости длины волны поверхностных дрейфующих ячеек от величины горизонтального числа Марангони для трех различных вертикальных чисел Марангони. Для сравнения приведены результаты для $Bo_{dyn} = 5.6$ (Рис.5.7а) и $Bo_{dyn} = 16.4$ (Рис.5.7б). Видно, что длина волны убывает с ростом Ma_{hor} , что хорошо согласуется с известным фактом уменьшения глубины проникновения термокапиллярного течения при увеличении его интенсивности. Отметим также, что с ростом динамического числа Бонда длина волны увеличивается. Если экстраполировать результаты в область меньших толщин слоя и оценить локальное вертикальное число Марангони для приповерхностной области, то становится понятным отсутствие поверхностной неустойчивости на карте режимов при $Bo_{dyn} = 1.8$. В тонких слоях увеличение интенсивности термокапиллярного течения также, как и в толстых слоях, приводит к стабилизации неустойчивости Бенара-Марангони во всем слое. Однако, в силу недостаточной толщины приповерхностного подслоя локальная величина Ma_{ver} не превышает критического значения, и ячеистая структура не развивается. По мере увеличения толщины слоя жидкости растет и толщина проникновения термокапиллярного течения, что делает возможным развитие неустойчивости и в приповерхностном слое, область существования которой расширяется при увеличении общей толщины слоя жидкости.

Вытеснение неустойчивости в зону приповерхностного термокапиллярного течения объясняет наблюдаемое скачкообразное увеличение скорости движения конвективных ячеек, проиллюстрированное ранее на Рис.5.3. Ячейки Бенара-Марангони, проникающие на всю глубину слоя, увлекаются одновременно как термокапиллярным, так и возвратным течением. Результирующая скорость дрейфа оказывается небольшой в силу практически скомпенсированного действия обоих потоков. Поверхностные ячейки увлекаются только термокапиллярным течением, не испытывая на себе

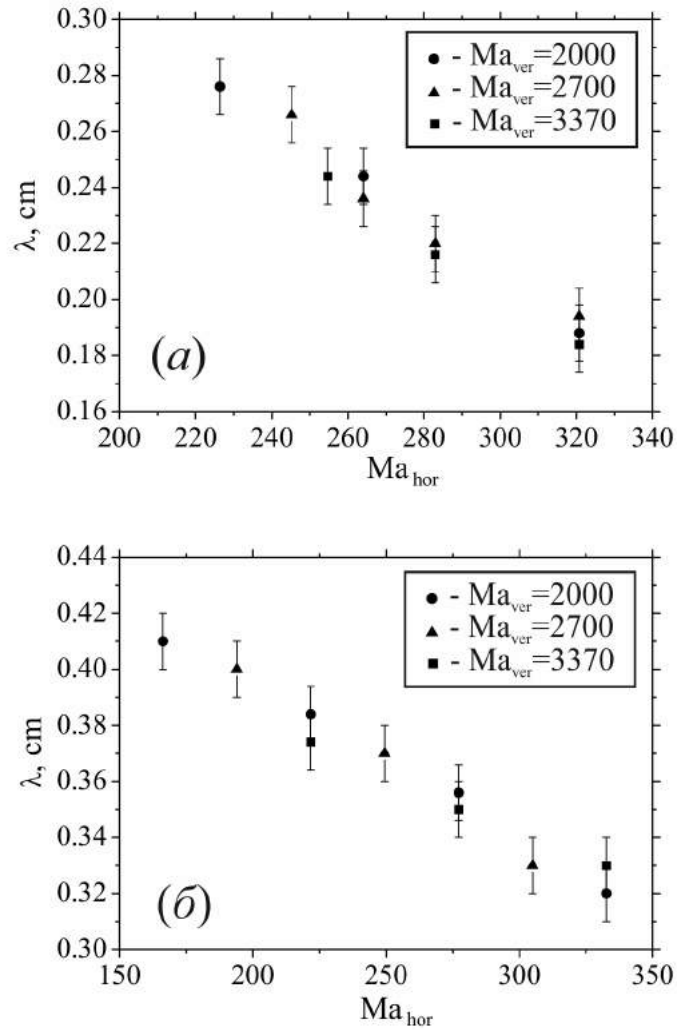


Рис. 5.7. Зависимость длины волны поверхностных дрейфующих ячеек от величины горизонтального числа Марангони для трех различных вертикальных чисел Марангони (обозначены на легенде к графику). (а) – $Bo_{dyn} = 5.6$, (б) – $Bo_{dyn} = 16.4$.

действия возвратного течения. В результате скорость дрейфа испытывает скачок при переходе в область существования приповерхностных структур. Движение поверхностных ячеек определяется только характеристиками термокапиллярного течения, что хорошо видно из графика зависимости скорости дрейфа поверхностных ячеек от величины горизонтального числа Марангони, представленного на Рис.5.8. Для сравнения приведены результаты для $Bo_{dyn} = 5.6$ (Рис.5.8а) и $Bo_{dyn} = 16.4$ (Рис.5.8б). Видно, что скорость дрейфа ячеек растет по мере увеличения Ma_{hor} , что является

результатом увеличения интенсивности термокапиллярного течения.

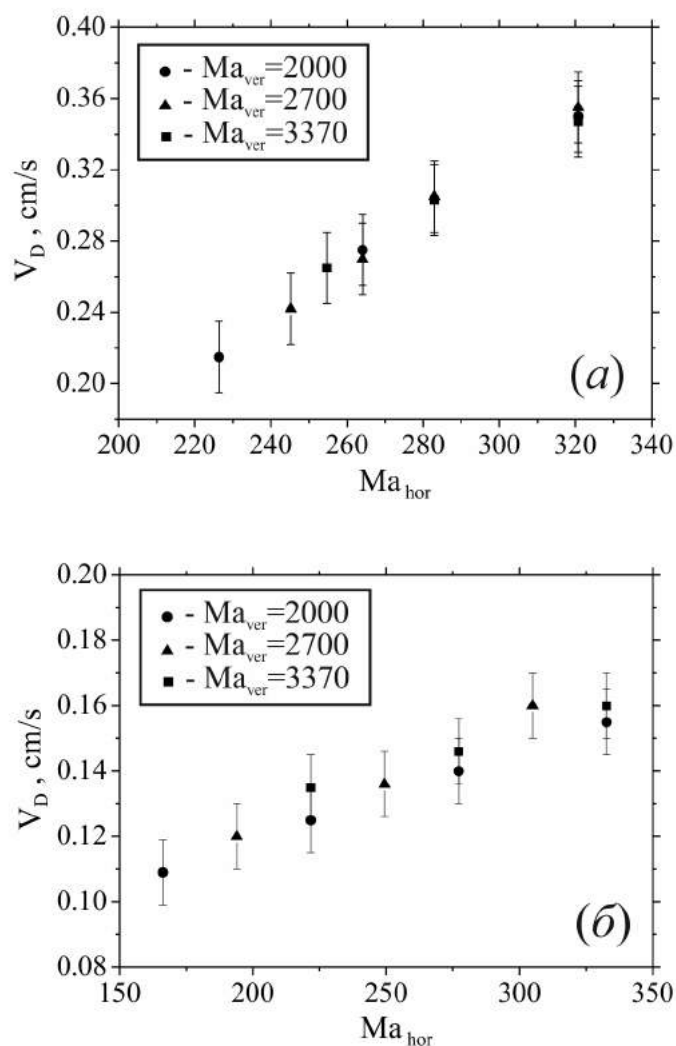


Рис. 5.8. Зависимость скорости поверхностных дрейфующих ячеек от величины горизонтального числа Марангони для трех различных вертикальных чисел Марангони (обозначены на легенде к графику). (а) – $Bo_{dyn} = 5.6$, (б) – $Bo_{dyn} = 16.4$.

Интересно отметить, что скорость дрейфа и длина волны поверхностных ячеек не зависят от величины вертикального числа Марангони. Все кривые, соответствующие различным Ma_{ver} на Рис.5.7 и Рис.5.8 совпадают. Это ещё раз подтверждает существование конвективных структур в области термокапиллярного течения, характеристики которого практически не зависят от величины вертикального числа Марангони.

5.2.4. Режим дрейфующих ячеек Бенара-Марангони.

Исследования пространственно-временных характеристик дрейфующих ячеек показало, что данные конвективные структуры демонстрируют более сложную эволюцию при изменении управляющих параметров, чем поверхностные структуры. На Рис.5.9 представлены зависимости скорости движения и длины волны дрейфующих ячеек Бенара-Марангони от величины горизонтального числа Марангони при различных вертикальных числах Марангони. Длина волны обезразмерена по толщине слоя жидкости. Для сравнения приведены результаты экспериментов в слоях различной толщины, соответствующие трем различным значениям динамического числа Бонда $Bo_{dyn} = 1.8$ (Рис.5.9а), $Bo_{dyn} = 5.6$ (Рис.5.9б) и $Bo_{dyn} = 16.4$ (Рис.5.9в).

Основное отличие от режима поверхностных структур состоит в том, что пространственно-временные характеристики дрейфующих ячеек существенно зависят от величины вертикального числа Марангони. При любых числах Бонда наблюдается рост длины волны с увеличением вертикального числа Марангони при фиксированном горизонтальном числе Марангони. Этот результат хорошо коррелирует с результатами исследований задачи Бенара-Марангони, когда к слою приложен только вертикальный градиент температуры. Этот факт был отмечен в пионерской работе Бенара [149,150] и позднее подтвержден в более детальных исследованиях [156,158,172]. Было обнаружено увеличение длины волны гексагональных ячеек по мере роста числа Марангони. Авторы исследований связывают наблюдаемое увеличение характерных размеров ячеек с увеличением глубины их проникновения в слой жидкости по мере увеличения приложенного вертикального перепада температуры. При небольших надкритичностях неустойчивость, формирующаяся в основном за счет термокапиллярного механизма, возникает вблизи поверхности раздела, не проникая глубоко в слой жидкости. По мере увеличения перепада температуры и, следовательно, роста вклада термогравитационного механизма в конвективное движение вовлекаются все более глубокие слои жидкости. Рост глубины проникновения конвективной структуры приводит к увеличению и длины волны в силу

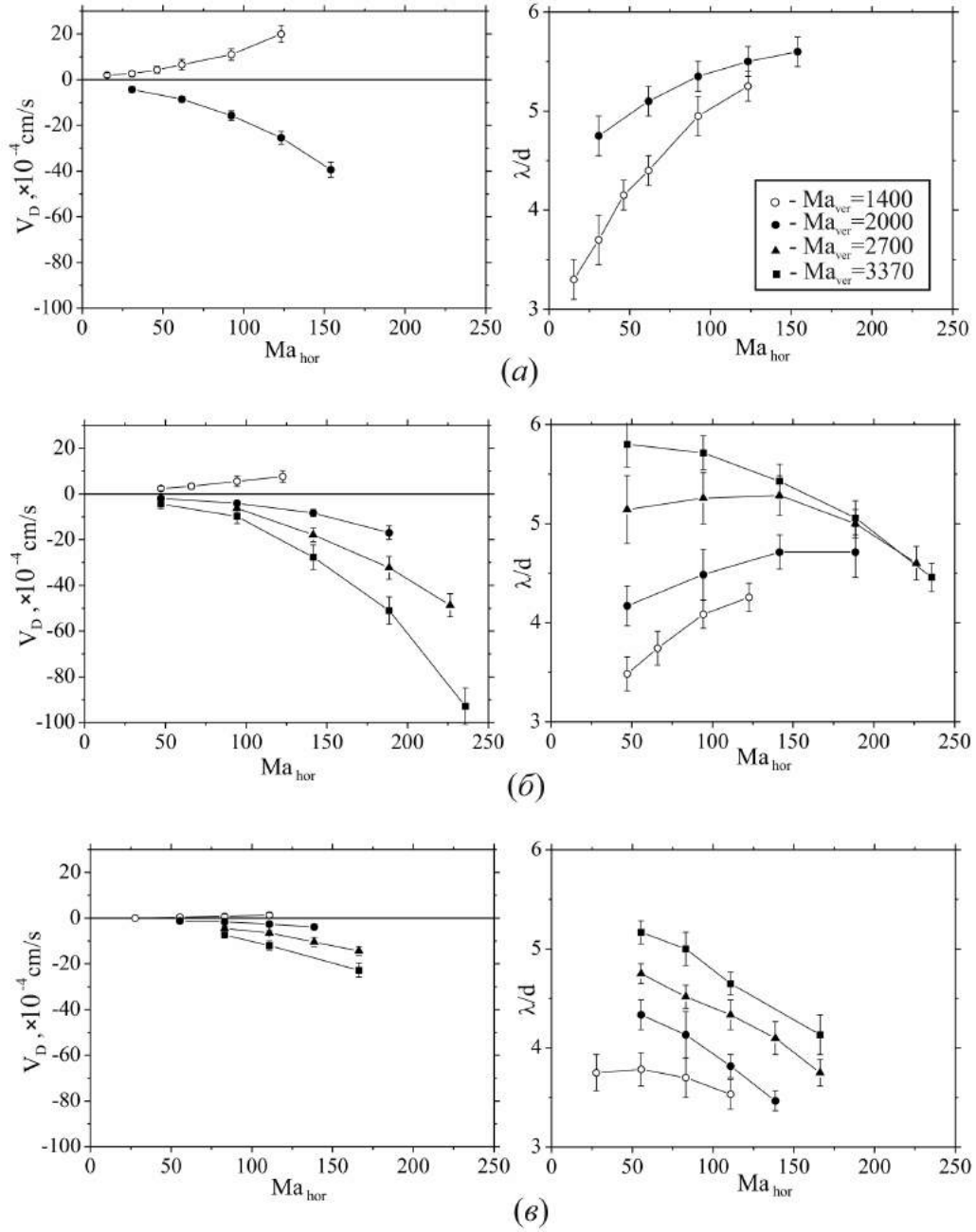


Рис. 5.9. Зависимость скорости движения (левая колонка) и безразмерной длины волны (правая колонка) дрейфующих ячеек Бенара-Марангони от величины горизонтального числа Марангони для трех различных вертикальных чисел Марангони (обозначены на легенде к графику). (a) – $Bo_{dyn} = 1.8$, (б) – $Bo_{dyn} = 5.6$, (в) – $Bo_{dyn} = 16.4$. Длина волны безразмерена по толщине слоя жидкости.

наличия связи между вертикальным и горизонтальным размером ячеек. По всей видимости, такой же механизм действует и в рассматриваемом в

диссертации случае. При фиксированном продольном градиенте температуры рост поперечного перепада температуры также ведет к увеличению вклада термогравитационного механизма по отношению к термокапиллярному, несмотря на наличие продольного течения жидкости.

Скорость дрейфа ячеек также существенно зависит от величины вертикального числа Марангони (см. Рис.5.9 левый столбец). Причем изменение данного безразмерного параметра приводит к изменению не только величины скорости движения конвективных структур, но и их направления. Положительная скорость дрейфа (от горячего края к холодному – направление термокапиллярного движения) сменяется на отрицательную (от холодного края к горячему – направление возвратного течения) при увеличении вертикального числа Марангони. Наблюдаемая смена знака скорости может быть объяснена взаимодействием ячеек с основным профилем течения. Ячейки Бенара-Марангони, проникающие на всю глубину слоя, увлекаются одновременно как термокапиллярным, так и возвратным течением. При малых вертикальных числах Марангони, как уже указывалось выше, ячейки развиваются вблизи поверхности, что определяет основной вклад в их движение со стороны термокапиллярного течения. По мере увеличения вертикального числа Марангони влияние со стороны возвратного течения возрастает за счет роста глубины проникновения ячеек. В конечном итоге знак скорости меняется, когда давление со стороны возвратного течения становится больше поверхностного. При увеличении горизонтального числа Марангони скорость дрейфа увеличивается, что отражает увеличение общей интенсивности продольного конвективного течения. Знак при этом не меняется, что говорит о пропорциональном росте интенсивности поверхностного и возвратного течений.

Не менее интересным результатом является обнаруженное в экспериментах уменьшение безразмерной длины волны дрейфующих ячеек Бенара-Марангони по мере роста динамического числа Бонда. Этот факт связан с увеличением влияния гравитации на формирование структуры конвективного движения. Ранее [173, 174] в серии экспериментальных исследований термокапиллярной конвекции, возбуждаемой горизонтальным градиентом температуры в ячейке квадратного сечения, было показано су-

щественное отличие структуры течения, наблюдаемой в условиях нормальной гравитации и на борту космической станции. В условиях микрогравитации движение жидкости развивается во всем предоставленном объеме, в то время как в наземных экспериментах наличие гравитации приводит к смещению всего течения, и термокапиллярной и возвратной частей, в приповерхностную область. Горизонтальная скорость в этом случае быстро убывает с вертикальной координатой при удалении от поверхности. В придонной области сохраняется только очень слабое движение жидкости. В рассматриваемой в диссертации ситуации увеличение динамического числа Бонда за счет роста толщины слоя жидкости приводит к аналогичному вытеснению конвективной зоны в приповерхностную область, уменьшая, тем самым, вертикальный и горизонтальный размеры ячеистой структуры.

С перемещением конвективной зоны в приповерхностную область связано, по всей видимости, и наблюдаемое уменьшение безразмерной длины волны с увеличением горизонтального числа Марангони в слоях большой толщины (см. Рис.5.9в). Увеличивающаяся интенсивность течения в случае толстых слоев жидкости, как было показано в Главе 1 (см. Рис.1.6б), приводит к вытеснению зоны течения из объема к поверхности. Область существования ячеек также сокращается, что приводит к уменьшению безразмерной длины волны, наблюдаемому в эксперименте.

В слоях малой толщины (малые динамические числа Бонда) наблюдается противоположная ситуация. Рост горизонтального числа Марангони приводит к увеличению длины волны ячеистой структуры. Объяснение обратного характера зависимости связано с влиянием термокапиллярного течения, играющего определяющую роль в тонких слоях. Принято считать, что конвективное движение, параллельное слою, не вносит вклад в интенсивность теплопереноса в поперечном направлении. Это справедливо при наличии только продольного движения и молекулярного переноса тепла через слой. В рассматриваемом случае течение Бенара-Марангони является превалирующим механизмом теплопередачи. Наличие термокапиллярного, приповерхностного и возвратного, течения приводит к удлинению ячеек вдоль потока, увеличивая тем самым путь, проходимый элементом жидкости между горизонтальными границами. В результате эффек-

тивность конвективного теплопереноса через слой, обусловленная неустойчивостью Бенара-Марангони, снижается тем больше, чем интенсивнее термокапиллярное течение. Аналогичный результат был получен при теоретическом исследовании устойчивости тонкого горизонтального слоя жидкости при наличии наклонного градиента температуры [165]. Авторы отмечают уменьшение числа Нуссельта по мере роста горизонтального градиента температуры. Несмотря на то, что в упомянутой работе проблема рассматривается в отсутствие силы тяжести, влияние термокапиллярного течения на теплоперенос через слой должно быть аналогичным, учитывая негравитационный характер неустойчивости Бенара-Марангони. Уменьшение теплопереноса поперек слоя должно приводить к увеличению перепада температуры и, как следствие, более интенсивному течению в ячейках, вовлекающему все более глубокие слои жидкости. Рост глубины проникновения конвективной структуры приводит к увеличению и длины волны.

При средних толщинах слоя ($Bo_{dyn} = 5.6$ Рис.5.9б), когда роль обоих перечисленных выше механизмов изменения длины волны сопоставима, наблюдается более сложная зависимость длины волны от горизонтального числа Марангони, имеющая экстремум. Очевидно, что наблюдаемые зависимости являются результатом нелинейного взаимодействия термокапиллярного и термогравитационного механизмов, вклад каждого из которых не только сложным образом зависит от толщины слоя и температурных условий на границах, но и определяется интенсивностью второго.

5.3. Обсуждение результатов.

Представленные выше результаты являются первым систематическим экспериментальным исследованием проблемы устойчивости плоского горизонтального слоя жидкости при наличии наклонного градиента температуры. Модификация традиционной конструкции кюветы, предполагающая создание специальной буферной зоны в слое жидкости, позволили полностью избавиться от краевых эффектов, возникающих вблизи боковых границ слоя, что делает возможным провести сравнение результатов с теоретическими исследованиями, выполненными для бесконечного слоя.

Поскольку последние были выполнены без учета гравитации, то такое сравнение возможно только в области малых динамических чисел Бонда. Сопоставление результатов демонстрирует хорошее качественное согласие. В частности, обнаружено стабилизирующее влияние термокапиллярного течения на неустойчивость Бенара-Марангони. Также наблюдается единый сценарий неустойчивости термокапиллярного адвективного течения при увеличении вертикального числа Марангони. В экспериментах так же, как и в теории, течение теряет устойчивость по отношению к продольным волнам, которые при дальнейшем увеличении вертикального перепада температуры сменяются дрейфующими Бенаровскими ячейками. Однако, количественное сравнение результатов показывает, что переход между режимами в эксперименте происходит при числе Марангони на порядок меньшем, чем предсказывается в теории. Такая существенная разница, возможно, объясняется тем, что в экспериментах влияние гравитации может быть только уменьшено, но не исключено совсем. Известно, что даже малый вклад термогравитационного механизма может приводить к более ранней неустойчивости слоя [103]. Другой причиной может служить деформация свободной поверхности, которая всегда есть в эксперименте, но которой пренебрегается в теоретических исследованиях.

Другой отличительной особенностью представленного исследования является широкий диапазон величин динамического числа Бонда, что позволило изучить эволюцию неустойчивости по мере увеличения вклада термогравитационного механизма в формирование конвективного течения. Показано, что в толстых слоях жидкости неустойчивость вытесняется в приповерхностную часть течения, в то время как возвратная часть течения остается устойчивой. При больших динамических числах Бонда данный тип вторичного течения становится доминирующим, сокращая область существования классической конвекции Бенара-Марангони. Именно данный тип неустойчивости ответственен за возникновение структур в расплавах, наблюдавшихся при выращивании кристаллов методом Чохральского, упоминавшихся во введении к данной главе. Результаты исследований были положены в основу рекомендаций для оптимизации технологического процесса. Анализ карт режимов (см. Рис.5.4) указывает на необходимость

уменьшения величины вертикального числа Марангони для перехода из области режима поверхностных дрейфующих ячеек в область стационарного, двумерного термокапиллярного течения, который более предпочтителен для качества конечного кристалла. Этого удастся добиться путем уменьшения теплоотдачи от поверхности расплава за счет излучения. Установленные над расплавом отражатели способны возвращать часть излучения, уменьшая, тем самым, теплопотери и, следовательно, поперечный перепад температуры на слое. Применение такой методики позволило управлять структурой конвективного течения в расплаве.

6. Аккумуляция твердых включений тепловой конвекцией Марангони в жидком мостике

Глава посвящена исследованию структуры и устойчивости термокапиллярного течения в цилиндрической геометрии. В этом случае межфазная поверхность лежит в (z, φ) -плоскости цилиндрического плоского слоя жидкости. Такая модель, получившая в гидродинамике название жидкий мостик, представляет собой объем жидкости цилиндрической формы, ограниченный сверху и снизу двумя соосными твердыми цилиндрами одинакового радиуса R и удерживаемый с боков силами поверхностного натяжения (см. Рис.6.1*a*). Твердые границы поддерживаются при различной температуре, в результате чего на свободной поверхности развивается термокапиллярное течение Марангони, которое при небольших перепадах температуры имеет вид торообразного, аксиально симметричного конвективного вала. Модель жидкого мостика имеет ряд уникальных отличий от моделей плоского и кольцевого слоя. В частности, такая конфигурация является единственной, для которой соотношение площади свободной поверхности $2\pi RL$ (L высота мостика) и площади твердых границ $2\pi R^2$

$$\frac{2\pi RL}{2\pi R^2} = \frac{L}{R} \equiv A$$

может быть больше единицы. В этом случае величина A , называемая аспектным соотношением, должна быть больше единицы, т.е. высота мостика больше его диаметра. Большой относительный размер свободной поверхности позволяет получать намного более интенсивные конвективные течения по сравнению с другими конфигурациями. Как следствие, данная модель демонстрирует широкий спектр возможных конвективных режимов вплоть до турбулентных. Это делает жидкий мостик уникальным научным объектом, который, помимо его прикладного значения в области технологий выращивания кристаллов, используется многими исследователями для те-

стирования возможностей методик численного эксперимента в предсказании поведения сложных нелинейных систем.

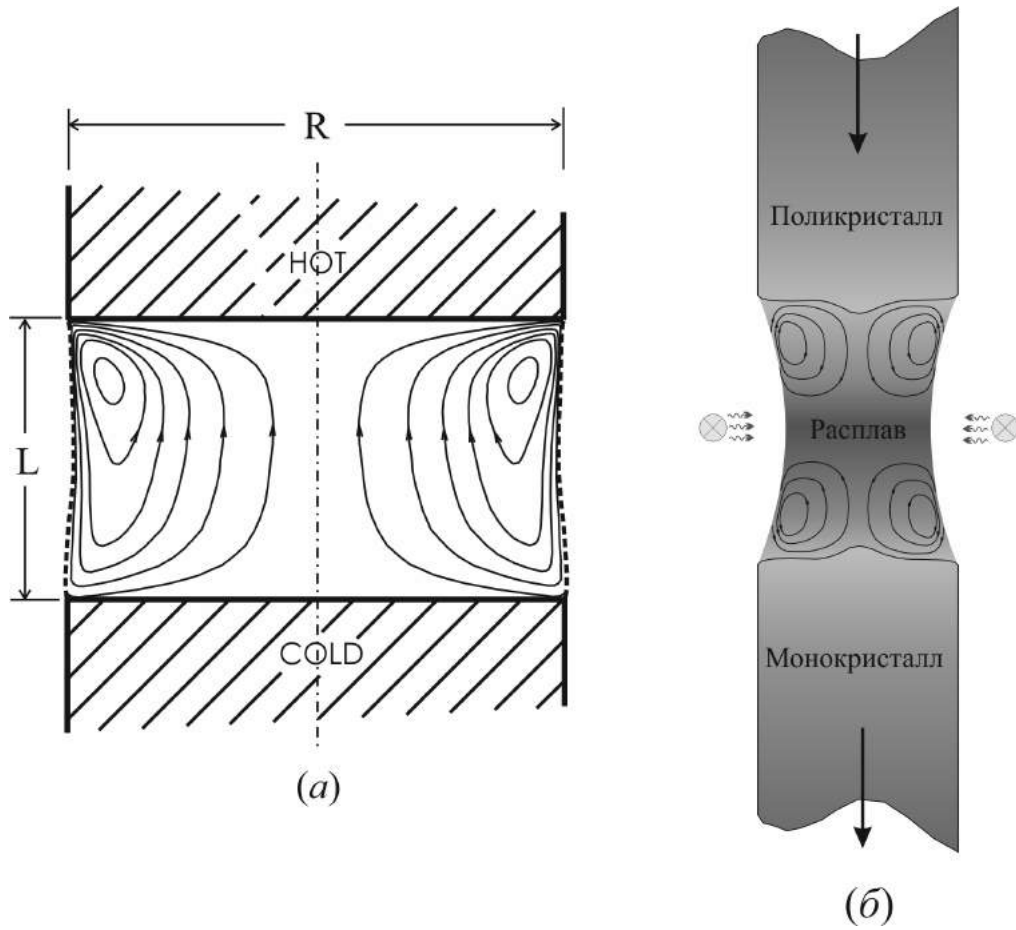


Рис. 6.1. (а) – схематическое изображение жидкого мостика и структуры стационарного конвективного течения, возникающего при числах Марангони меньше критического, (б) – схема метода плавающей зоны.

Другой отличительной особенностью модели является ориентация свободной поверхности относительно вектора силы тяжести. Действие капиллярной силы и силы тяжести вдоль одного направления приводит к уникальному сценарию взаимодействия термокапиллярного и термогравитационного механизмов конвективного движения. Более того, жидкий мостик является единственной моделью, где свободная поверхность может быть не обязательно плоской. В условиях микрогравитации она может быть выгнутой или вогнутой в зависимости от величины так называемого объемного соотношения $S = V/V_0$, где V и V_0 – текущий объем жидкости и объем, соответствующий плоской поверхности. В присутствии земного тяготения поверхность имеет участки с кривизной обоих знаков вследствие

конкуренции сил поверхностного натяжения и гидростатического давления.

Интерес к данной модельной ситуации возник в связи с развитием технологии выращивания кристаллов методом плавающей зоны (floating zone method). Метод был предложен в 1952 году Г.Тойрером, химиком из Bell Labs, как бестигельный вариант известного метода зонной плавки. Суть метода заключается в создании локализованной в пространстве зоны расплава в вертикально ориентированном стержне из металлического или полупроводникового материала. Для создания расплавленной зоны обычно используется кольцевой индуктор или галогеновая кольцевая лампа (см. Рис.6.1б). Движение нагревателя вдоль стержня приводит к перемещению зоны расплава и связанных с ней плоскостей плавления и кристаллизации. При этом примеси, лучше растворимые в жидкой, чем в твердой, фазе, накапливаются в зоне расплава, в результате чего удается получать материалы с высокой степенью чистоты. Многократное расплавление одного и того же стержня позволяет получать вещества, на десять миллиардов атомов которого приходится всего один атом примеси. Если изначально в расплавленную зону поместить затравочный кристалл того же вещества, то при кристаллизации зоны будет получаться монокристалл с заданной кристаллографической ориентацией и крайне низким содержанием примеси. На сегодняшний день методом плавающей зоны выращиваются монокристаллы более чем 1500 веществ. Основным достоинством метода, по сравнению с методами Бриджмена, Чохральского или зонной плавки, является отсутствие контакта материала со стенками тигеля, что исключает попадание нежелательных примесей в процессе очистки материала или выращивания монокристалла. Ещё одним важным достоинством метода является интенсивное естественное перемешивание расплава. Расплавление очень узкой зоны приводит к появлению больших градиентов температуры вдоль поверхности расплава и, как следствие, возникновению интенсивной термокапиллярной конвекции. Активное перемешивание жидкости приводит к пространственной гомогенизации потоков тепла и массы, что способствует более равномерному росту кристалла. Особенно это важно при выращивании примесных полупроводниковых кристаллов, где рав-

номерное распределение примеси в расплаве является залогом ее однородной концентрации в кристалле. С другой стороны, наличие конвективного движения может являться, одновременно, и источником неоднородностей структуры выращиваемого кристалла. Действительно, любые временные вариации интенсивности движения жидкости будут сказываться на температуре расплава вблизи фронта кристаллизации и, следовательно, скорости его роста и скорости диффузии примеси в твердую фазу. Полосчатые структуры, перпендикулярные направлению роста кристалла, соответствующие периодическим изменениям концентрации примеси, были зафиксированы во многих экспериментах. Вначале такие структуры объяснялись наличием нестационарной термогравитационной конвекции, развивающейся при больших перепадах температуры. Однако уже первые эксперименты в условиях микрогравитации показали наличие подобных структур [175], что свидетельствует о неустойчивости термокапиллярного течения Марангони, которое, в силу негравитационного механизма формирования конвекции, является единственным источником движения жидкости в отсутствие гравитации. Результаты экспериментов показали необходимость проведения систематических исследований структуры и устойчивости течений в расплавленной зоне. Поскольку проведение как экспериментальных, так и теоретических исследований в геометрии, соответствующей реальному технологическому процессу, оказывается достаточно сложным, в середине 1970-х была предложена упрощенная модельная ситуация. В силу того, что с гидродинамической точки зрения верхняя и нижняя половины расплавленной зоны одинаковы, и течения в них, в первом приближении, не взаимодействуют, то для исследования структуры конвективного течения достаточно исследовать только половину зоны. Так появилась задача о жидком мостике. Несмотря на столь грубое упрощение, данная модель позволила исследователям выявить особенности структуры конвективного течения и понять основные физические механизмы, ответственные за его неустойчивость.

Поскольку проведение экспериментов с реальными расплавами сопряжено с целым рядом трудностей (высокие температуры эксперимента, непрозрачные жидкости), первые исследования были проведены с про-

зрачными органическими жидкими средами. Результаты экспериментов, проведенных как в условиях микрогравитации, так и на Земле, показали, что основное осесимметричное течение теряет устойчивость при достижении критического значения числа Марангони, величина которого зависит от числа Прандтля, аспектного соотношения и температурных граничных условий на свободной границе (число Био $Bi = \alpha L / \lambda$, где α – коэффициент теплоотдачи от свободной поверхности в окружающую среду, λ – коэффициент теплопроводности жидкости). В результате неустойчивости в жидкости развивается колебательное движение. Эти результаты были первоначально использованы исследователями для объяснения полосчатых структур в выращенных монокристаллах, появление которых связывалось с нестационарными режимами конвекции Марангони в расплаве [175]. Однако, позднее, в ряде теоретических исследований [176–182] было показано, что в зависимости от используемой жидкости неустойчивость может развиваться в силу разных физических механизмов. В жидкостях с $Pr < O(1)$, что соответствует жидким металлам и расплавам полупроводниковых материалов, неустойчивость всегда имеет гидродинамическую природу, в то время как в жидкостях с $Pr > O(1)$ наиболее опасными являются тепловые моды неустойчивости. В частности, теоретически было показано, что в расплавах наиболее опасной является стационарная мода, связанная с неустойчивостью сдвигового течения под свободной поверхностью. Вторичное течение остается стационарным, но теряет аксиальную симметрию. Ось тороидального течения отклоняется на некоторый угол относительно оси симметрии задачи. Впервые косвенно данный результат был подтвержден в экспериментах, проведенных в условиях микрогравитации [183]. Анализ структуры выращенных кристаллов показал наличие осевой асимметрии, что было интерпретировано, как результат асимметрии течения расплава. Прямые измерения, проведенные в жидком мостике из расплавленного олова в ходе космического эксперимента JAXA [184,185], окончательно подтвердили стационарный характер первичной неустойчивости. Дальнейшее увеличение числа Марангони приводит к развитию вторичной неустойчивости и появлению колебательного режима течения. В ряде численных исследований [186–191] было показано, что неустойчивость сохраняется при

$Pr \rightarrow 0$, что говорит о ее чисто гидродинамической природе. Структура течения представляет собой асимметричный тор, ось которого осциллирует или вращается относительно оси симметрии задачи. Результаты теоретических исследований были подтверждены в ходе серии блестящих экспериментов с жидкими мостиками из расплава кремния, проведенных в условиях микрогравитации [192–195]. Добавление в расплав циркониевых шариков и применение рентгеновской радиографии позволило визуализировать структуру конвективного течения при различных значениях числа Марангони.

В жидком мостике с $Pr > O(1)$ неустойчивость развивается вследствие совершенно другого механизма, обусловленного взаимодействием теплового и гидродинамического полей. В экспериментах Швабе [37] и позднее Чана [38] было показано, что по достижении критического перепада температуры в жидком мостике развивается колебательный режим конвективного движения, в результате чего в азимутальном направлении распространяются температурная и гидродинамическая волны. Физический механизм был предложен в теоретическом исследовании Смита и Дэвиса [29], которые исследовали неустойчивость конвекции Марангони в плоском бесконечном горизонтальном слое. Было показано, что наиболее опасной является колебательная мода неустойчивости, приводящая к появлению вторичного течения в виде так называемых гидротермических волн. Вдоль такой волны периодически меняется скорость и температура жидкости. Волны распространяются в направлении градиента температуры под некоторым углом, величина которого зависит от величины числа Прандтля. Авторы [29] также делают вывод, что аналогичный механизм ответственен за неустойчивость в случае жидкого мостика. Данное предположение было подтверждено в многочисленных теоретических и численных исследованиях [176, 177, 179, 196–198], а также в ходе экспериментов, проведенных как в условиях микрогравитации, так и на Земле [47, 199–203]. Интересно отметить, что в жидком мостике в случае $Pr > O(1)$ гидротермические волны являются единственным видом неустойчивости при любых надкритичностях и геометрических соотношениях задачи, в то время как в плоском и кольцевом слое при увеличении толщины наиболее опасными

становятся другие типы неустойчивости.

На сегодняшний день известно, что основное тороидальное течение в жидком мостике становится неустойчивым при достижении числом Марангони критического значения $Ma_c \sim O(10^4)$, величина которого зависит от числа Прандтля, геометрического соотношения и числа Био на свободной границе. Волновое число m возникающей гидротермической волны определяется, в основном, аспектным соотношением. Для центров областей существования течения с определенным волновым числом соотношение между этими двумя параметрами может быть записано, как $mA \approx 2.1$. Волна распространяется в азимутальном направлении почти под прямым углом к направлению градиента температуры. Этот факт контрастирует с результатами Смита и Дэвиса, в работе которых было получено слабое, около 30° , отклонение волнового вектора от направления градиента температуры для жидкостей, традиционно применяемых в экспериментах с жидкими мостиками. Позднее Кавамура [167], исследовав экспериментально структуру гидротермических волн в плоском слое и жидком мостике, показал, что вблизи горячей границы волна испытывает резкий излом с изменением угла почти до 90° , что связано с ее взаимодействием с температурным погранслоем. Поскольку эффект наблюдается только в узкой приграничной области, в протяженных плоских слоях на него обычно не обращают внимания. В жидких мостиках размер этой зоны становится сопоставим с длиной свободной поверхности L . Исследователи показали, что рождающиеся вблизи холодной границы волны распространяются под углом, предсказываемым теорией Смита и Дэвиса, однако затем угол резко меняется и остается неизменным вплоть до горячей границы мостика. Данное объяснение было подтверждено в экспериментах Швабе [203–205], который исследовал структуру волн в длинных мостиках в условиях микрогравитации, где относительный размер приграничной области был небольшой. Благодаря этому на большей части свободной поверхности наблюдалась гидротермическая волна, угол наклона которой к вектору градиента температуры хорошо согласовался с результатами Смита и Дэвиса.

Интересным является начальный процесс развития неустойчивости. В теоретических исследованиях было показано, что неустойчивость все-

гда зарождается в виде суперпозиции двух волн с одинаковым волновым числом, но различным направлением распространения. В результате на поверхности устанавливается стоячая волна. Через некоторое время, при неизменных параметрах задачи, одна из волн затухает, и в жидком мостике остается только бегущая волна противоположного направления. Таким образом, стоячая волна является лишь переходным режимом к бегущей волне. Такой сценарий является обычным при рождении волн в осесимметричных задачах. В частности, пример такого переходного процесса описан в Главе 1 данной диссертации. Обзор результатов экспериментальных исследований показывает, что в ряде случаев исследователи наблюдали стоячие волны, как самостоятельный режим течения [206]. Т.е. стоячая волна оставалась устойчивой сколь угодно долгое время, что идет в разрез с результатами теоретических исследований. Объяснение наблюдаемых разногласий, а также физический механизм, приводящий к стабилизации стоячей волны, были даны в работах автора диссертации [5, 7]. Обзор результатов по данному вопросу представлен в разделе 6.4 настоящей главы.

Другим интересным явлением, сопровождающим развитие гидротермической волны в жидком мостике, является пространственное перераспределение конвективным потоком мелких твердых включений, взвешенных в жидкости. Впервые данное явление было описано Швабе [207, 208], который обнаружил, что визуализирующие частицы, добавленные в жидкость для изучения структуры течения, не остаются равномерно распределенными по объему жидкого мостика, а аккумулируются со временем в упорядоченные пространственные структуры. За достаточно короткое время частицы собираются вдоль замкнутой линии спиралевидной формы, оборачивающейся вокруг основного тороидального конвективного вихря целое число раз. Благодаря сдвигу фаз между движением частиц в соседних участках петли структура движется в азимутальном направлении. Каждая частица при этом движется внутри тороидального вихря по своей орбите, лежащей в (r, z) -плоскости. Хотя в некоторых работах был отмечен медленный дрейф частиц в азимутальном направлении вдоль петли [206, 207]. Форма аккумуляционных структур зависит от величины числа Марангони и геометрического соотношения размеров жидкого мостика. Пространственная

и временная частота спиральной петли совпадает с таковыми у гидродинамической волны, что говорит об их причинно-следственной взаимосвязи. Тем не менее, структуры возникают не во всей области параметров, где существует течение в виде гидротермической волны. Обзор литературы показывает необходимость проведения дополнительных исследований для выяснения необходимых и достаточных условий возникновения спиральных структур, а также физических механизмов, ответственных за их формирование.

Данная глава представляет результаты систематического экспериментального исследования вопросов формирования аккумуляционных структур в жидком мостике. В частности, исследованы вопросы их взаимосвязи со структурой вторичного течения в виде гидротермических волн, что позволило сформулировать необходимые и достаточные условия их формирования. Изучение особенностей формирования и формы спиральных структур в зависимости от размеров, формы и плотности твердых включений, а также исследование явления в условиях микрогравитации, позволили предложить физический механизм, благодаря которому происходит пространственное перераспределение включений в конвективном потоке. В главе также представлены результаты экспериментального исследования влияния поверхностно-активной примеси, содержащейся на свободной поверхности, на структуру гидротермических волн и формирование аккумуляционных структур.

6.1. Экспериментальная установка и методики измерений.

6.1.1. Конструкция экспериментальной установки и ее особенности при использовании различных жидких сред.

Схема экспериментальной установки представлена на Рис.6.2. Основной частью являются два соосных вертикальных цилиндра одинакового радиуса $R = 3.0$ мм, между которыми помещалась жидкость 1, формирующая жидкий мостик. Для соосной ориентации цилиндров нижний цилиндр вместе с теплообменником крепился на специальной регулировочной платформе 2, позволявшей производить его линейное перемещение в трех

Таблица 6.1. Физико-химические свойства использованных в исследовании жидкостей.

Свойство	$NaNO_3$	н-декан
Рабочая температура T , °C	350	25
Плотность ρ , г/см ³	1.875	0.73
Кинематическая вязкость ν , 10 ⁻² см ² /с	1.27	1.24
Температуропроводность χ , 10 ⁻⁴ см ² /с	15.8	8.45
Число Прандтля Pr	8	15
Поверхностное натяжение σ , дин/см	115	23.9
$d\sigma/dT$, 10 ⁻² дин/см·К	-0.07	-0.09
Коэффициент теплового расширения, 10 ⁻³ К ⁻¹	-0.38	-1.06

взаимно перпендикулярных направлениях и поворот относительно двух взаимно перпендикулярных осей, лежащих в горизонтальной плоскости. Вертикальное перемещение нижнего цилиндра позволяло изменять высоту жидкого мостика L , варьируя соотношение его геометрических размеров $A = L/R$, являющееся одним из двух основных безразмерных параметров задачи. Верхний цилиндр \mathcal{Z} был изготовлен из монокристалла сапфира с кристаллографической осью c , совпадающей с осью цилиндра во избежание двулучепреломления. Использование прозрачного материала позволяло производить наблюдения за движением визуализирующих частиц и подсветку жидкого мостика сквозь верхний цилиндр. Высокая теплопроводность сапфира относительно жидкости задает изотермические условия на верхней твердой границе мостика. Материал нижнего цилиндра \mathcal{Z} и конструкция верхнего и нижнего теплообменников зависели от используемой жидкости. В описываемых экспериментах для создания мостика были использованы н-декан ($C_{10}H_{22}$) и расплав нитрата натрия ($NaNO_3$), физико-химические свойства которых представлены в Таблице 6.1.

По сравнению с силиконовым маслом, традиционно применяемым в экспериментальной гидродинамике, н-декан обладает рядом преимуществ, делающим предпочтительным его использование в рассматриваемой проблеме. Во-первых, благодаря более низкому давлению насыщенного пара он

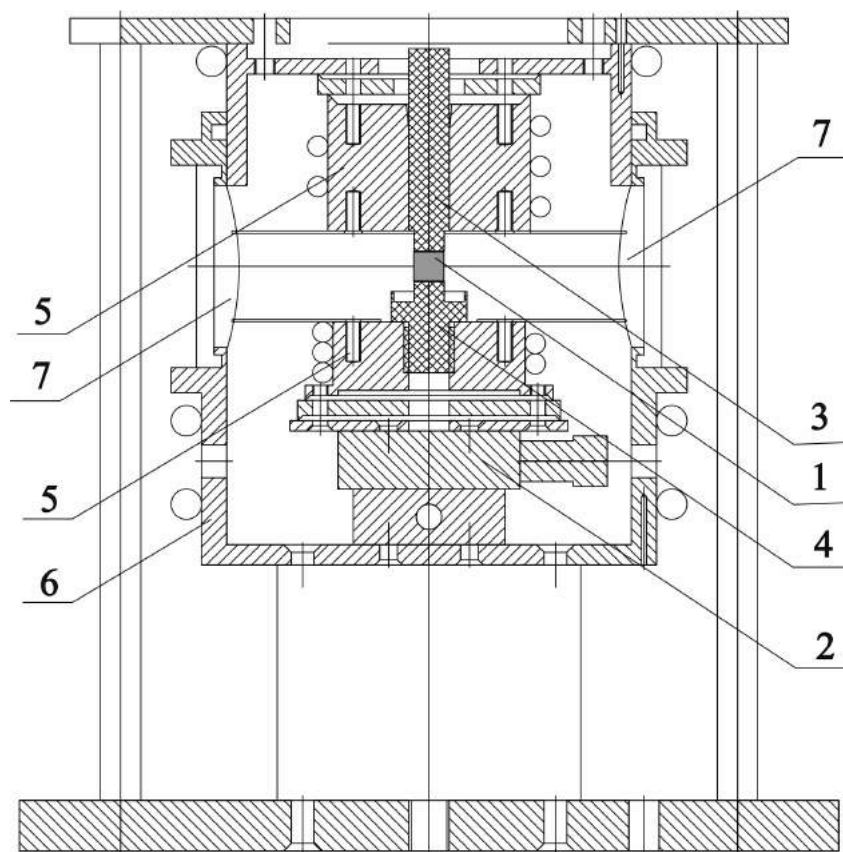


Рис. 6.2. Схема экспериментальной установки для исследования конвективного течения в жидком мостике. Цифрами на схеме обозначены: 1 – жидкий мостик, 2 – регулировочная платформа, 3 – верхний удерживающий цилиндр из сапфира, 4 – нижний удерживающий цилиндр, 5 – теплообменники, 6 – термостатируемый внешний кожух, 7 – боковые прозрачные окна.

медленнее испаряется, что исключает необходимость корректировки объема жидкого мостика в течение эксперимента. Во-вторых, он обладает более высоким поверхностным натяжением, что позволяет создавать более устойчивые жидкие мостики. Рост высоты последнего в условиях земного тяготения ведет к увеличению гидростатического давления и, как следствие, к искривлению цилиндрической поверхности, что, в конечном итоге, приводит к сваливанию жидкости через край нижнего цилиндра. Более высокое поверхностное натяжение н-декана позволяет получать устойчивые мостики большей высоты. С другой стороны испаряющаяся со свободной поверхности жидкость конденсируется на боковой поверхности холодного нижнего цилиндра, формируя жидкую пленку. Наличие такой пленки

также приводит к неустойчивости жидкого мостика за счет лучшей смачиваемости боковой поверхности. Слабая испаряемость *n*-декана позволяет минимизировать такой сценарий неустойчивости. Для увеличения устойчивости жидкого мостика нижний цилиндр изготавливался с острой (угол 45°) кромкой, а на его боковую поверхность наносилось специальное тефлоновое покрытие, существенно уменьшающее поверхностную энергию. Нижний цилиндр был изготовлен из латуни и через резьбовое соединение крепился в отверстии металлического теплообменника. Верхний сапфировый цилиндр плотно вставлялся в отверстие металлического теплообменника. Через теплообменники *5* прокачивалась вода от двух термостатов для поддержания постоянного перепада температур на границах жидкого мостика. Температура верхней границы всегда задавалась выше для подавления термогравитационного механизма конвективного движения. Для измерения температуры нижней границы мостика в латунный цилиндр была инсталлирована *Ni-Cr-Ni* термопара, спай которой располагался на расстоянии 0.5 мм от поверхности, граничащей с жидкостью. Температура границы сапфирового цилиндра в зависимости от температуры теплообменника была измерена при помощи ИК камеры в ходе подготовительных экспериментов. Полученная разность температур ΔT использовалась при вычислении величины числа Марангони

$$Ma = \frac{\sigma_T \Delta T R^2}{L \eta \chi}$$

где σ_T – температурный коэффициент поверхностного натяжения, η и χ – коэффициенты динамической вязкости и температуропроводности, соответственно. Для создания жидкого мостика *n*-декан подавался в пространство между цилиндрами через вертикальное отверстие, сделанное вдоль оси нижнего цилиндра. Подача жидкости осуществлялась при помощи шприца, поршень которого был присоединен к микрометрической подвижке. Это же устройство применялось для перемешивания жидкости в мостике для гомогенизации распределения визуализирующих частиц при измерениях времени формирования аккумуляционных структур.

Теплообменники с закрепленными цилиндрами помещались в герметичную цилиндрическую камеру *6* диаметром 100 мм, температуру стенок

которой можно было поддерживать при заданной температуре. Внутри камеры были установлены две горизонтальные тонкие металлические пластины (см. Рис.6.2), отделяющие пространство с жидким мостиком. Так как пластины контактировали с теплообменниками, то в воздушном зазоре между ними устанавливалась устойчивая температурная стратификация, что позволяло минимизировать интенсивность конвективных воздушных потоков вокруг жидкого мостика. Обычно, средняя температура в жидком мостике задавалась равной температуре окружающего воздуха в камере. Последняя измерялась термопарой, спай которой был расположен на расстоянии $r = 28$ мм от оси цилиндров посередине воздушного зазора. Все эксперименты с *n*-деканом, за исключением специально оговоренных в тексте случаев, проводились при температуре $\bar{T} = 25^\circ\text{C}$. Камера имела четыре стеклянных окна γ для организации боковой подсветки и наблюдений процессов в жидком мостике.

Вторая часть представленных экспериментов была проведена с использованием расплава нитрата натрия NaNO_3 в качестве рабочей жидкости. Несмотря на очевидные неудобства, связанные с высокой температурой эксперимента (температура плавления нитрата натрия составляет 307°C) и химической агрессивностью вещества, имеется ряд преимуществ работы с расплавами. Во-первых, высокое поверхностное натяжение расплава (см. Таблицу 6.1) позволяло создавать в условиях земного тяготения жидкие мостики с величиной соотношения геометрических размеров $A \approx 2$, что невозможно при использовании обычных жидкостей. Во-вторых, высокая окислительная способность расплава нитрата натрия делает невозможным формирование пленок поверхностно-активных примесей на поверхности расплава. Третья, и главная, причина использования данного вещества в представленных экспериментах заключается в возможности плавного варьирования плотности жидкой среды путем создания расплава смеси нитрата натрия и нитрата цезия $\text{Na}_{1-x}\text{Cs}_x\text{NO}_3$. Близкие физико-химические свойства расплавов этих веществ (см. Таблицу 6.2) позволяют менять плотность расплава при изменении их относительного содержания, оставляя при этом неизменной величину числа Марангони. Это дает возможность изучать процессы формирования и параметры аккумуля-

Таблица 6.2. Некоторые физико-химические свойства расплавов нитрата натрия и нитрата цезия при 350°C.

Свойство	NaNO ₃	CsNO ₃
Плотность при 350°C, ρ , г/см ³	1.875	2.894
Поверхностное натяжение, σ , дин/см	115	88
$d\sigma/dT$, 10 ⁻² дин/см·К	-0.07	-0.07
Коэффициент теплового расширения, 10 ⁻³ K ⁻¹	-0.38	-0.41

ляционных структур в зависимости от соотношения $\alpha = \rho_p/\rho_f$ плотностей взвешенных частиц ρ_p и жидкости ρ_f , не меняя при этом размер частиц и, что самое главное, количественные характеристики поля скоростей, создающего изучаемые структуры.

Нижний цилиндр в экспериментах с расплавами солей был изготовлен из графита. Боковая поверхность была модифицирована в процессе окисления тонкого приповерхностного слоя графита, что позволило существенно снизить поверхностную энергию, уменьшив, тем самым, смачиваемость расплавом. Торцевая поверхность, наоборот, не модифицировалась для лучшего смачивания расплавом. Такое сочетание поверхностных свойств боковой и торцевой поверхностей графитового цилиндра позволило существенно повысить устойчивость жидкого мостика относительно сваливания жидкости через край нижнего цилиндра. Температура металлических теплообменников в рассматриваемом случае задавалась электрическими нагревателями, питаемыми через контроллеры с обратной связью, осуществляемой через термопары. Для контроля температуры нижней границы спай термопары был инсталлирован в графитовый цилиндр, на расстоянии 0.5 мм от торцевой поверхности. В случае с расплавами зазор между сапфировым цилиндром и теплообменником заполнялся термопастой. В этом же зазоре располагался спай верхней термопары, по которой отсчитывалась температура верхней границы. Конструкция внешней камеры идентична описанной выше для экспериментов с н-деканом. Стенки внешней камеры имели дополнительный слой теплоизоляции для уменьшения теплопотерь.

Для создания жидкого мостика из расплава использовалась следующая процедура. Цилиндры прогревались до одинаковой температуры $\bar{T} = 350^\circ\text{C}$. Расплав необходимого состава заранее создавался в отдельном тигле. Тонкий (диаметр 0.3 мм) платиновый стержень служил для переноса вещества из тигля в пространство между цилиндрами. Для этого стержень быстро опускался и вынимался из тигля. За короткое время контакта стержень не успевал прогреться, благодаря чему на его поверхности успевало затвердеть некоторое количество расплава. Повторяя процедуру, можно было захватить таким образом необходимое количество вещества. Через специальное отверстие в стенке внешней камеры конец стержня вводился в пространство между цилиндрами, где происходило обратное расплавление вещества. После создания жидкого мостика необходимого объема на цилиндрах задавалась разность температур при сохранении средней температуры. Платиновый стержень также использовался для перемешивания расплава в мостике при создании изначального гомогенного распределения взвешенных частиц в экспериментах по измерению времени формирования аккумуляционных структур.

6.1.2. Визуализирующие частицы.

Для детального изучения вопросов влияния характеристик взвешенных частиц на процессы формирования и параметры аккумуляционных структур в экспериментах были использованы несколько типов частиц, характеристики которых представлены в Таблице 6.3. Первый тип представлен частицами из синтетического корунда (Al_2O_3), применяемыми для создания полировальных порошков и паст (GE Superabrasives Inc.). Частицы представляют собой неправильные многогранники с соотношением размеров по трем координатным осям, близким к единице. Частицы поставляются производителем наборами с очень узким распределением по размерам (см. Таблицу 6.3 и Рис.6.3а). Второй тип представлен сферическими частицами из кварцевого (SiO_2) стекла (Heraeus Quarzschmelze, Hanau, Germany). В продаваемых наборах содержатся частицы от 1 до 100 мкм (Рис.6.3б). Предварительная сепарация посредством многократной седиментации частиц в жидкости позволила выделить группы частиц

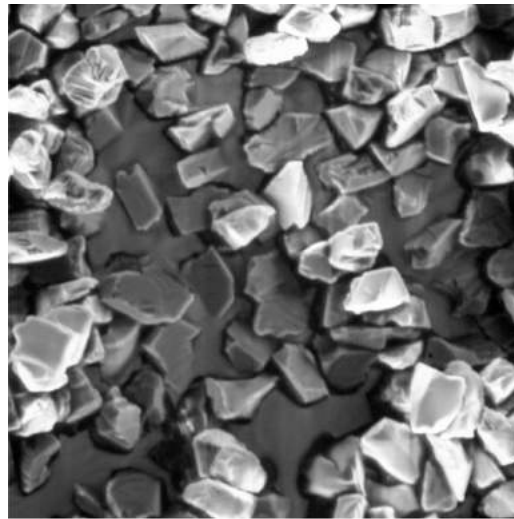
Таблица 6.3. Свойства использованных в исследовании частиц.

Материал частиц	ρ , г/см ³	Форма	Размер, мкм
Синтетический корунд	3.52	неправильные многогранники	1–3, 2–4, 4–6, 5–10, 8–12, 10–15, 10–20, 15–20, 20–30, 22–36, 30–40, 40–50, 40–60
Кварцевое стекло	2.20	сферы	1–5, 6–10, 8–16, 9–13, 12–28, 32–42, 45–55
Кварцевое стекло	0.79	полые сферы	16
Пиролитический углерод	2.15	пластинки	линейный размер: 5–10 соотношение размеров 4:1
Алюминиевая пудра	2.7	пластинки	линейный размер: 15–20 соотношение размеров 10:1

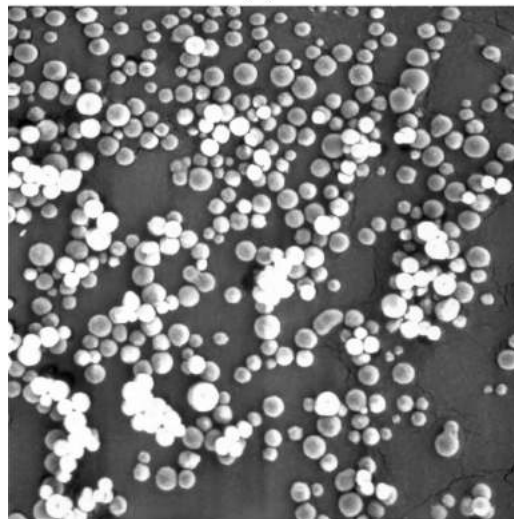
с достаточно узким распределением по размерам (см. Таблицу 6.3). Третий тип представлен полыми сферическими частицами из кварцевого стекла (Eccospheres STD60, Emerson&Cuming, USA). Поставляемые производителем частицы имеют достаточно узкое распределение по размерам со средним диаметром $\bar{d} = 16$ мкм и очень широкое распределение по плотности, вызванное существенным разбросом диаметра внутренней воздушной полости. Предварительная сепарация в метаноле позволила выделить частицы с плотностью около 0.79 г/см³. В некоторых экспериментах были использованы частицы в виде пластинок с различным соотношением линейного размера к толщине: алюминиевая пудра (линейный размер 15–20 мкм, соотношение сторон 10 : 1) и частички пиролитического углерода (линейный размер 5–10 мкм, соотношение сторон 4 : 1).

Перед началом заполнения жидкостью пространства между цилиндрами небольшое количество частиц помещалось на торцевую поверхность нижнего цилиндра. По мере заполнения жидкого мостика частицы смешивались с жидкостью, постепенно образуя однородную взвесь. Относительная объемная концентрация частиц составляла в среднем величину порядка 10^{-4} , что позволяло исключить из рассмотрения механизмы, связанные

с межчастичным взаимодействием.



(а)



(б)

Рис. 6.3. Изображение визуализирующих частиц: (а) синтетический корунд, размер 10 – 15 мкм, (б) кварцевое стекло, размер 6 – 10 мкм.

6.1.3. Методы наблюдения и измерительные методики.

Для наблюдения движения частиц и процессов формирования аккумуляционных структур были использованы различные методы подсветки. При измерении времени формирования структур и изучения их формы применялся вариант полной подсветки. При наблюдениях сбоку свет от протяженного источника направлялся в жидкий мостик через прозрачный верхний сапфировый цилиндр. При этом необходимо помнить, что наблюдаемая форма структур из частиц искажается за счет эффекта линзиро-

вания из-за цилиндрической формы жидкого мостика. Более того, тонкий приповерхностный слой жидкости оказывается невидим из-за эффекта полного внутреннего отражения. При наблюдениях сверху, через сапфировый цилиндр, свет от протяженного источника направлялся в жидкий мостик через боковые окна внешней камеры. Неравномерности освещения, связанные с цилиндрической формой мостика, компенсировались одновременной подсветкой со всех четырех направлений. При необходимости наблюдений структуры течения или формы аккумуляционных структур только в некоторой выделенной области жидкого мостика применялась стандартная методика подсветки с помощью лазерного ножа, ориентированного, как правило, в горизонтальной или вертикальной плоскости. Изображения движущихся частиц наблюдались с помощью стереомикроскопа и при необходимости записывались с помощью видеокамеры.

Температурные колебания, вызванные движением гидротермической волны в азимутальном направлении, регистрировались при помощи *Ni-Cr-Ni* термопары толщиной 30 мкм. Спай термопары устанавливался на расстоянии 0.1 мм от свободной поверхности. Термопара крепилась к микрометрической подвижке, что позволяло перемещать спай вдоль свободной поверхности в вертикальном направлении. В некоторых случаях измерения проводились тремя термопарами, расположенными на одной высоте, но имеющими различную азимутальную координату. Корреляционный анализ сигналов с таких термопар позволял определять направление движения гидротермической волны (по направлению или против часовой стрелки) и ее азимутальную скорость.

6.2. Результаты экспериментов.

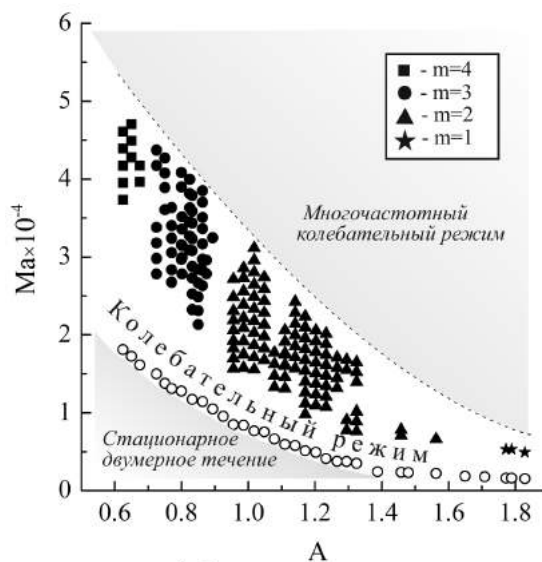
6.2.1. Структура, область существования и условия формирования аккумуляционных структур.

На начальной стадии экспериментальных исследований была определена область существования аккумуляционных структур на карте безразмерных параметров задачи (Ma, A). Экспериментальная процедура состояла в следующем. Вначале создавался жидкий мостик с некоторым фик-

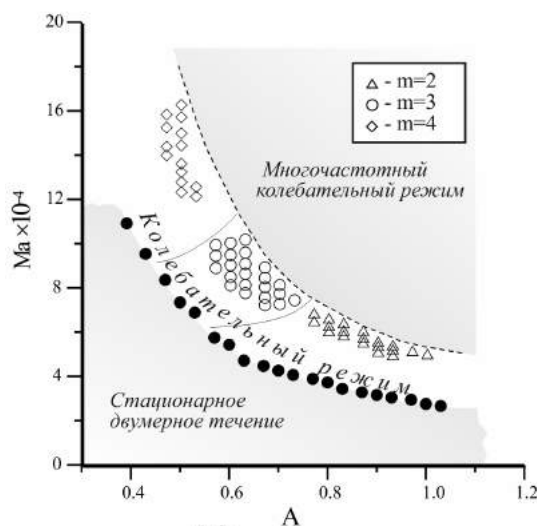
сированным соотношением геометрических размеров. Температура обоих цилиндров в начале эксперимента была одинаковая и равнялась $\bar{T} = 25^\circ\text{C}$ для *n*-декана и $\bar{T} = 350^\circ\text{C}$ для расплава соли. После создания мостика и установления неизменного распределения температуры внутри камеры на цилиндрах задавалась некоторая разность температур, и проводилось наблюдение установившейся структуры течения. Данная процедура повторялась для различных разностей температур и соотношений геометрических размеров мостика.

Наблюдения показали, что при небольших значениях перепада температуры в жидком мостике устанавливается стационарное течение в форме тороидального конвективного вихря, внешняя линия тока которого проходит по свободной поверхности жидкости. По мере увеличения разности температур интенсивность течения растет. По достижении некоторого критического перепада температуры и, следовательно, критического значения числа Марангони стационарное течение теряет устойчивость, в результате чего устанавливается колебательный режим течения в виде бегущей в азимутальном направлении гидротермической волны. Величина критического числа Марангони быстро увеличивается по мере уменьшения соотношения геометрических размеров (см. Рис.6.4). Уменьшение последнего означает уменьшение отношения площади поверхности жидкости, на которой действует термокапиллярная сила, генерирующая течение, к площади поверхности жидкости, граничащей с твердым телом, где выполняется условие прилипания. Очевидно, это ведет к уменьшению энергии, вкачиваемой в объем жидкости за счет термокапиллярного механизма, по отношению к энергии, диссипируемой вязким механизмом на твердых границах, что, безусловно, должно приводить к стабилизации основного конвективного течения.

Азимутальное волновое число m возникающего вторичного течения зависит, в основном, от соотношения геометрических размеров мостика и уменьшается при увеличении этого параметра. Вторичное течение с определенным волновым числом существует в определенном диапазоне значений A . В целом, произведение волнового числа на соотношение геометрических размеров остается примерно постоянной величиной, как было показано в



(a)



(б)

Рис. 6.4. Карта режимов конвективного течения в координатах число Марангони – соотношение геометрических размеров для жидкого мостика из (а) расплава нитрата натрия и (б) н-декана.

ряде более ранних исследованиях [38, 209].

Дальнейшее увеличение числа Марангони приводит к появлению более сложного по структуре колебательного течения, характеризующегося наличием сразу нескольких частот в спектре. В целом, для обеих жидкостей область существования гидротермической волны представлена на карте режимов в виде относительно узкой полосы параметров, внутри которой существуют области с различным значением азимутального волнового числа. Сравнение карт для двух жидкостей показывает, что в расплаве данный

режим наблюдается при меньших числах Марангони. Это обусловлено двумя факторами. Во-первых, числа Прандтля используемых в исследовании жидкостей отличаются в два раза (см. Таблицу 6.1). В ранних теоретических [177, 179] и экспериментальных [210] исследованиях было показано, что критическое значение числа Марангони растет с увеличением числа Прандтля. Этому факту можно привести следующее физическое объяснение. С ростом числа Прандтля уменьшается размер вязких пограничных слоев вблизи твердых границ мостика, внутри которых сосредоточен основной перепад температуры на границе раздела. Соответственно, эффективный градиент температуры на оставшейся части свободной поверхности между погранслоями уменьшается. Таким образом, при одной и той же разности температур между твердыми границами, которая фигурирует в расчете числа Марангони, мостик, образованный жидкостью с большим числом Прандтля, оказывается под действием меньшей термокапиллярной силы. Вторая причина разности критических чисел Марангони, полученных для исследуемых жидкостей, состоит в различной интенсивности теплоотдачи со свободной поверхности и, следовательно, различных значениях числа Био. В случае *n*-декана средняя температура жидкого мостика примерно равна температуре окружающего воздуха. В такой ситуации теплоток со свободной поверхности в среднем практически отсутствует, что соответствует значениям числа Био, близким нулю. В экспериментах с нитратом натрия средняя температура расплава $\bar{T} = 350^\circ\text{C}$ существенно выше температуры окружающего воздуха в камере, что способствует интенсивной теплоотдаче от свободной поверхности и, следовательно, большему значению числа Био. Ранее в ряде теоретических и экспериментальных исследований [185, 211–221] было показано, что увеличение числа Био ведет к быстрому уменьшению величины критического числа Марангони. Физически это связано с увеличением эффективного температурного градиента в средней части свободной поверхности.

Несмотря на количественные различия, карты режимов для обеих жидкостей в целом похожи: между областью стационарного течения, соответствующей малым числам Марангони, и областью многомодового колебательного течения, реализующегося при больших надкритичностях, рас-

положена относительно узкая зона существования колебательного режима в виде гидротермической волны с определенным волновым числом. Внутри каждой такой зоны располагается замкнутая область параметров, при которых наблюдается формирование аккумуляционных структур (АС). На Рис.6.4 данные области отмечены точками, соответствующими параметрам, при которых наблюдается формирование структур.

Временная развертка процесса формирования АС с азимутальным волновым числом $m = 3$ в n -декане представлена на Рис.6.5. Первое изображение (Рис.6.5а) получено спустя 1-2 с после окончания процесса перемешивания, когда поле скорости уже успело восстановиться. Видно, что со временем происходит пространственное перераспределение визуализирующих частиц, изначально равномерно распределенных по объему в процессе предварительного перемешивания. Причем процесс достаточно быстрый – первые признаки формирующейся структуры становятся заметными уже через несколько секунд (Рис.6.5б), а через 20-30 с большая часть частиц находятся внутри пространственной структуры.

На Рис.6.6 представлена 3D реконструкция АС с $m = 3$, восстановленная в процессе наблюдения структуры в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Видно, что АС представляет собой одномерный объект в виде замкнутой линии спиралевидной формы, оборачивающейся вокруг основного тороидального конвективного вихря целое число раз. Наблюдения показывают, что часть структуры расположена на свободной поверхности (участки $a - b$ на Рис.6.6). Здесь частицы, формирующие АС, движутся вместе с термокапиллярным течением по границе раздела. Затем в точке b , будем далее называть ее точкой инжектирования, структура заходит в объем. На участке $b - a$ частицы, формирующие АС, движутся вместе с возвратным течением. Затем вблизи горячей границы структура вновь выходит на поверхность в точке a . Необходимо отметить, что каждая частица АС, в первом приближении (медленный азимутальный дрейф частиц вдоль АС будет обсужден ниже), движется по своей орбите внутри тороидального конвективного вихря, оставаясь в пределах одной (r, z) -плоскости и не меняя своего азимутального положения. Благодаря сдвигу фаз между движением частиц в соседних участках петли возникает впечатление, что АС,

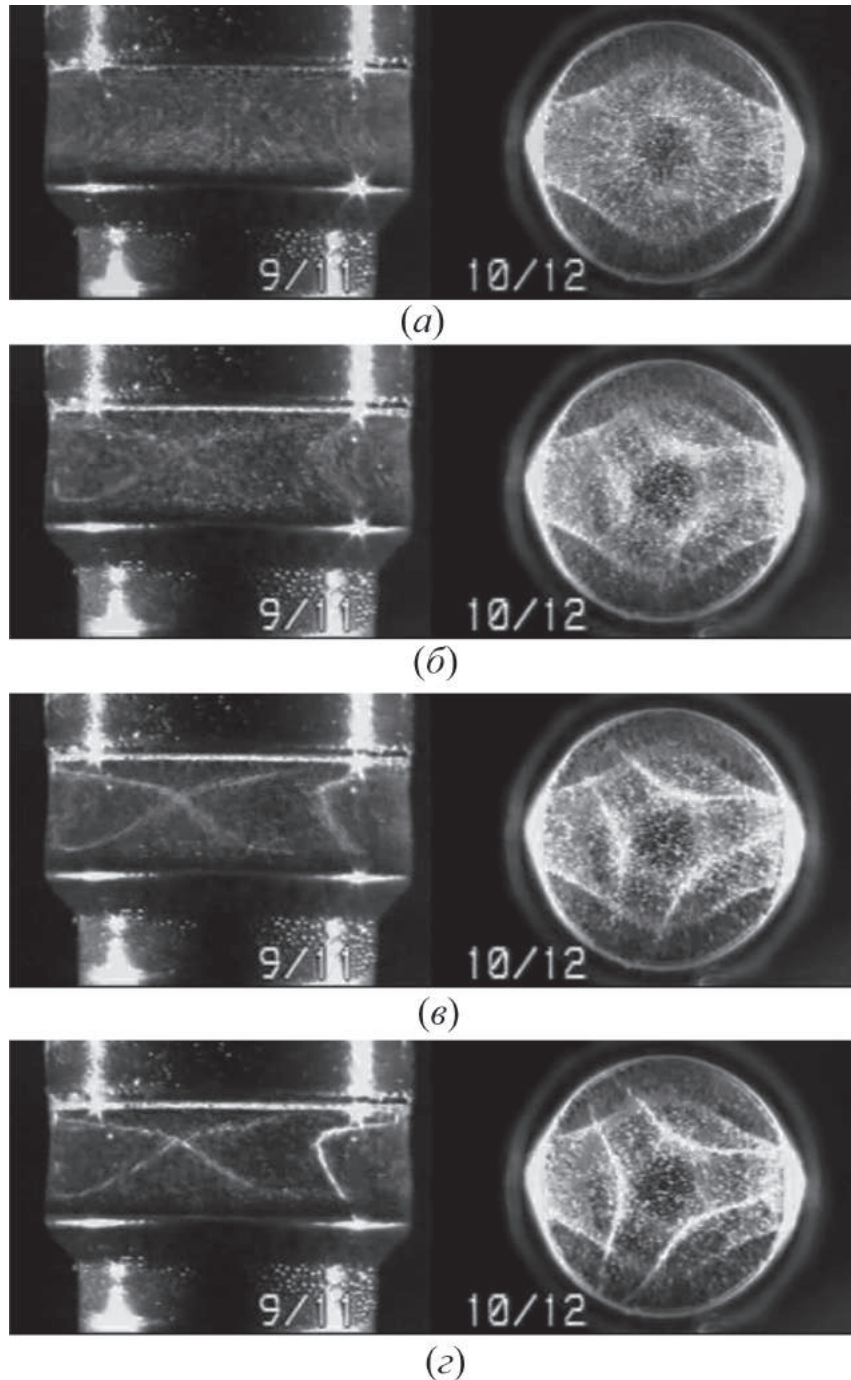


Рис. 6.5. Визуализация пространственного распределения визуализирующих частиц в объеме жидкого мостика в различные моменты времени после перемешивания: (а) – $t = 0$, (б) – $t = 7$ с, (в) – $t = 12$ с, (г) – $t = 30$ с.

как целое, движется в азимутальном направлении. В этом смысле полезной будет аналогия с движением частиц в поперечной волне (например, поверхностные волны в жидкости или волна на упругом натянутом шнуре), при движении которой каждая частица среды совершает колебательное движение в пределах одной плоскости.

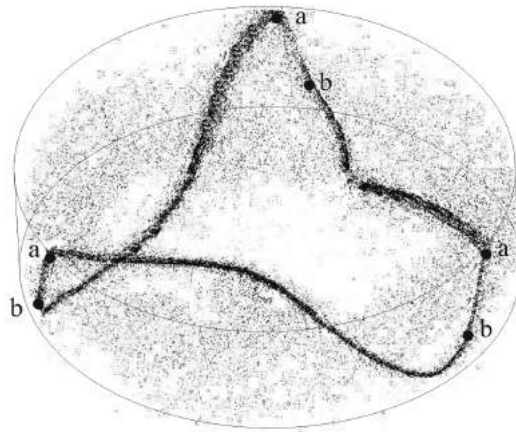


Рис. 6.6. 3D реконструкция АС с $m = 3$, восстановленная по наблюдениям структуры в двух взаимно перпендикулярных направлениях.

Количество оборотов АС вокруг основного конвективного вихря совпадает с азимутальным волновым числом гидротермической волны, что говорит о тесной связи этих явлений. На Рис.6.7 приведены изображения АС с различным значением азимутального волнового числа. Структуры, соответствующие $m = 4$, $m = 3$ и $m = 2$ (Рис.6.7а-в) получены в н-декане. Для наблюдения АС с $m = 1$ (Рис.6.7г) необходимо создание жидкого мостика с соотношением размеров $A \approx 2$, что возможно только в мостике из расплава нитрата натрия за счет большого поверхностного натяжения, способного компенсировать дестабилизирующее действие гидростатического давления. Область параметров, при которой наблюдается эта АС, оказывается очень небольшой, что, очевидно, связано с узкой областью параметров существования одномодовой гидротермической волны в условиях сильно искривленной поверхности жидкого мостика.

На Рис.6.8 представлена АС с азимутальным волновым числом $m = 14$, полученная в расплаве. Для ее реализации в эксперименте были использованы отдельные графитовые цилиндры большего радиуса $R = 10$ мм. Структура наблюдается в узком диапазоне соотношения геометрических параметров $A \approx 0.21$. Видно, что, несмотря на кратное увеличение размеров мостика, сохраняется подобие наблюдаемой структуры.

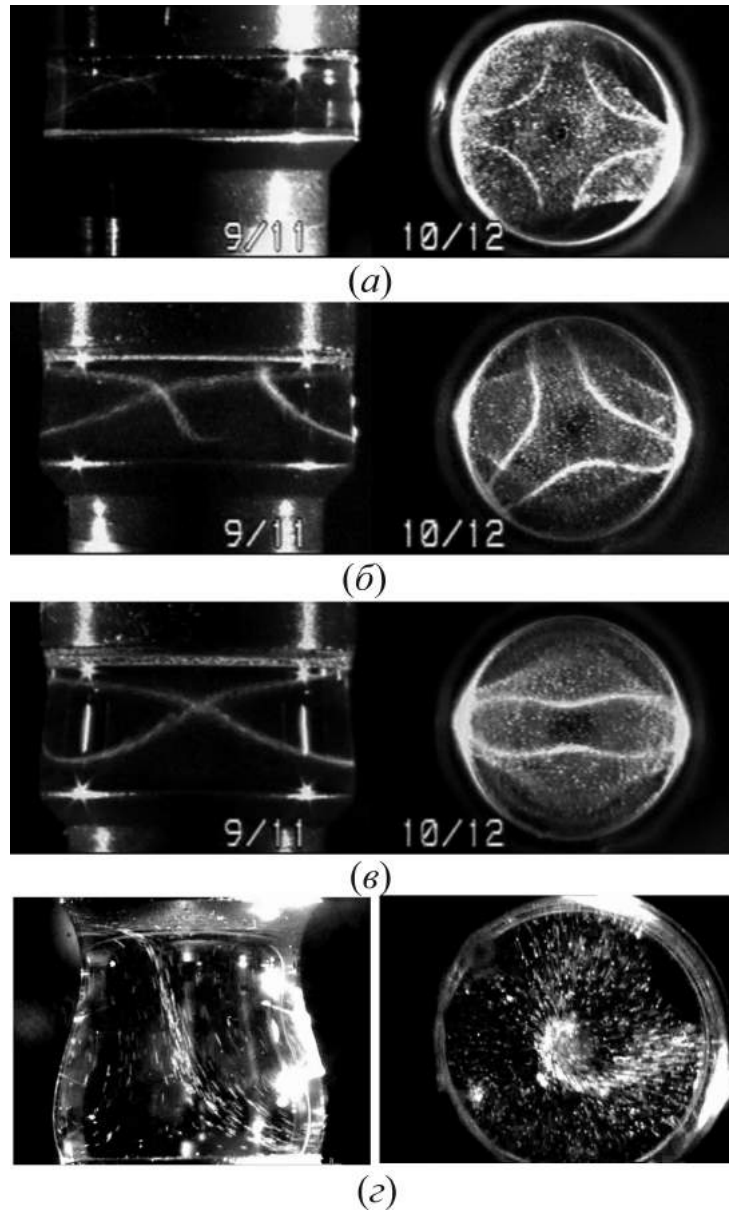


Рис. 6.7. Изображения аккумуляционных структур с различным значением азимутального волнового числа: (а) – $m = 4$, (б) – $m = 3$, (в) – $m = 2$, (г) – $m = 1$.

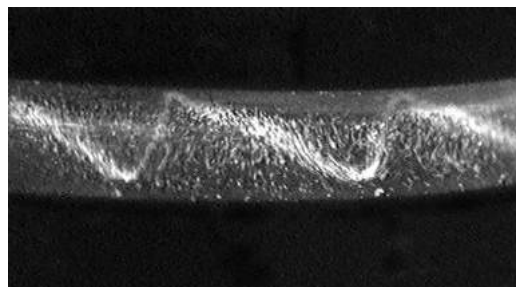


Рис. 6.8. Изображения аккумуляционной структуры со значением азимутального волнового числа $m = 14$.

Таким образом, результаты наблюдений показывают, что область формирования АС всегда расположена внутри зоны существования гидротермической волны с тем же азимутальным волновым числом, т.е. *наличие такого типа течения является необходимым условием для формирования АС*. Однако, это условие необходимое, но не достаточное, так как в остальной части области существования колебательного режима конвекции АС не формируется. На Рис.6.9 приведены фотографии течения за пределами области АС. Изображения получены в вертикальном и горизонтальном лазерном ноже. Наблюдается однородное распределение частиц. Темные зоны полигональной формы в центре на виде сверху появляются вследствие оседания более плотных частиц в области, куда не проникает возвратная часть конвективного течения. При $m > 3$ размер зоны возвратного течения становится меньше радиуса жидкого мостика, в результате чего в центре формируется неподвижная зона, не участвующая в конвективном движении. В результате, более плотные частицы, используемые в иллюстрируемом эксперименте, быстро оседают на поверхность нижнего цилиндра, и зона оказывается более темной на изображении. Распределение же частиц, движущихся внутри конвективной зоны, остается однородным.

Внутри области параметров, отмеченной точками на Рис.6.4, наблюдается формирование АС. Однако, время формирования структур не одинаковое. Под временем формирования будем понимать время, прошедшее от момента создания однородного распределения частиц за счет перемешивания до момента визуального регистрирования первых заметных признаков появления структуры. Необходимо отметить два важных момента в методике измерения данной величины. Во-первых, измеряемое время включает в себя время восстановления течения после внесения возмущений в процессе перемешивания. Учитывая, что довольно сложно определить момент восстановления течения и тот факт, что длительность этого процесса по сравнению со всем измеряемым временем невелика, проще включить его в измерения. Во-вторых, определение момента появления структуры является довольно субъективным процессом и может меняться от наблюдателя к наблюдателю. Однако это вносит только систематическую погрешность,

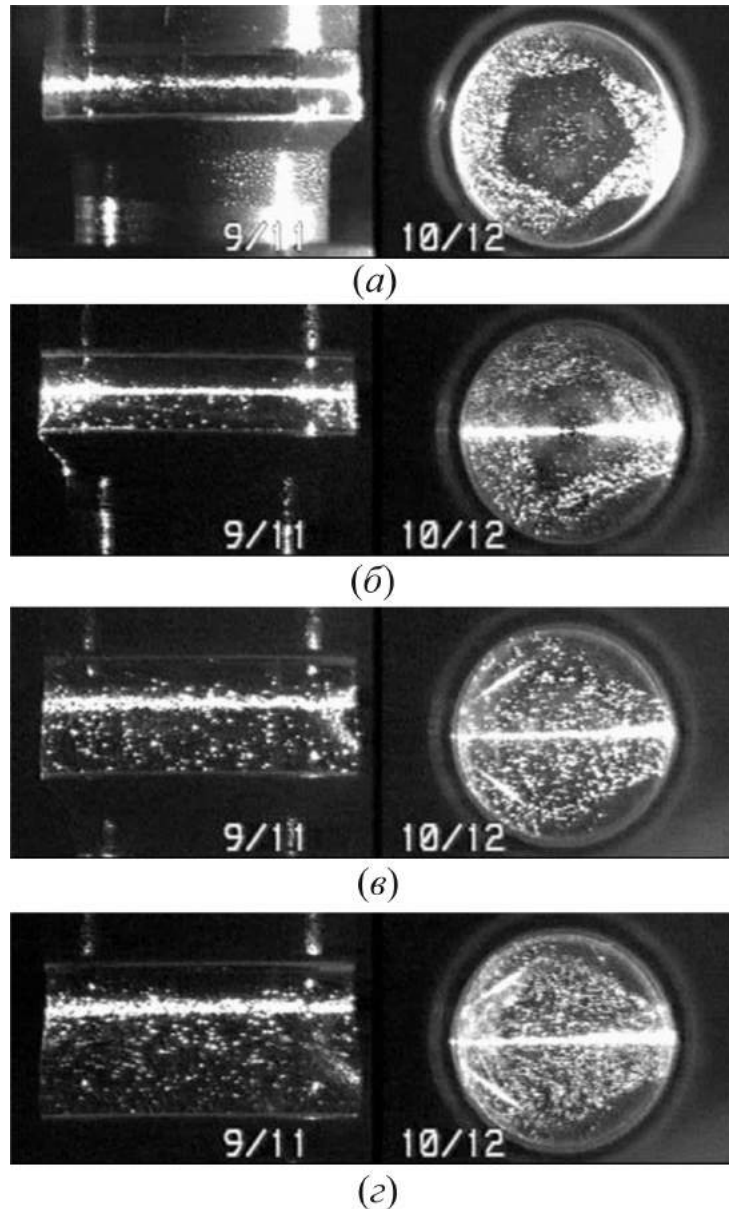


Рис. 6.9. Распределение частиц в объеме жидкого мостика при колебательном режиме течения, но за пределами области существования АС. Визуализация проводилась при вертикальной (левая колонка) и горизонтальной (правая колонка) ориентации лазерного ножа. Изображения соответствуют различным значениям азимутального волнового числа гидротермической волны: (а) – $m = 5$, (б) – $m = 4$, (в) – $m = 3$, (г) – $m = 2$.

связанную с особенностями наблюдателя, но не может изменить вид зависимостей. На Рис.6.10 представлена зависимость времени формирования АС с $m = 2$ в н-декане от соотношения геометрических параметров жидкого мостика при фиксированном перепаде температуры между удерживающими цилиндрами. Фактически, это центральный срез области па-

раметров формирования АС с $m = 2$ на карте (Ma, A) , представленной на Рис.6.4. Видно, что самое короткое время формирования наблюдается в центре области, и, затем, оно быстро возрастает при приближении к ее краям. Причина такого резонансного вида зависимости становится понятной при сравнении двух характерных времен задачи: периода гидротермической волны, формирующей АС, и орбитального времени движения частицы в (r, z) -плоскости. Измерения показали, что указанные времена совпадают в центре области, т.е. при минимальном времени формирования. При удалении от центра области времена начинают все больше отличаться. Таким образом, *достаточным условием формирования АС является совпадение периода гидротермической волны и орбитального времени движения частицы*. Отклонение от этого условия приводит к резкому возрастанию времени формирования, а затем и к невозможности появления структур. Физический механизм, стоящий за этим условием, будет подробно исследован в разделе 6.3.

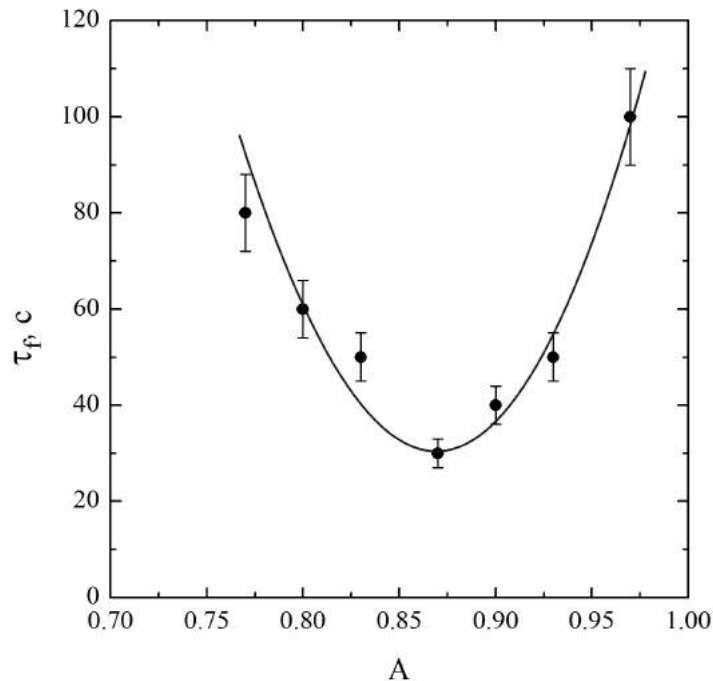


Рис. 6.10. Зависимость времени формирования АС с $m = 2$ в н-декане от соотношения геометрических размеров жидкого мостика при фиксированном перепаде температуры между удерживающими цилиндрами.

Резонансный характер явления усиливается и следующими наблюдениями. Как было отмечено выше, увеличение числа Марангони приводит

к появлению более сложного по структуре колебательного течения, характеризующегося наличием сразу нескольких частот в спектре [206, 222]. На границе между одночастотным и многочастотным режимами обнаруживаются очень узкие резонансные области с гораздо более сложной формой АС. На Рис.6.11 представлены фотографии подобных структур, наблюдаемых в области соотношения геометрических размеров, соответствующих азимутальным числам $m = 2$ и $m = 4$, соответственно, но при больших числах Марангони. Очевидно, что резонанс орбитального движения частиц одновременно с несколькими кратными частотами приводит к появлению дополнительных «завитков» в АС.

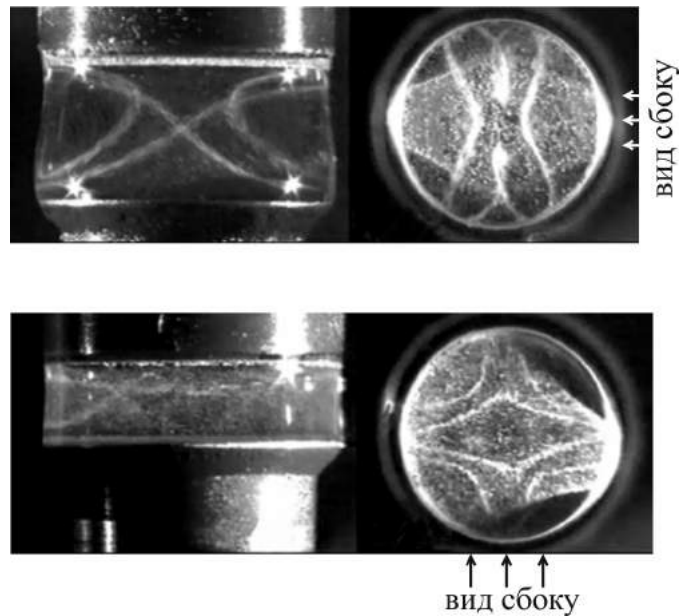


Рис. 6.11. Аккумуляционные структуры, наблюдаемые в области многочастотного колебательного режима конвективного течения.

6.2.2. Структура течения и распределение температуры в гидротермической волне и их роль в аккумуляции частиц.

Результаты экспериментов, представленные в данном параграфе, были получены в жидком мостике из *n*-декана с $A = 0.63$ и $\Delta T = 12.0 K$, что соответствует оптимальным условиям (центр области) формирования АС с $m = 3$. В жидкость были добавлены частицы из синтетического корунда диаметром 10 – 15 мкм. Температурные колебания, вызванные распространением гидротермической волны в азимутальном направлении, регистри-

ровались при помощи *Ni-Cr-Ni* термопары толщиной 30 мкм. Спай термопары устанавливался на расстоянии 0.1 мм от свободной поверхности. Термопара крепилась к микрометрической подвижке, что позволяло перемещать спай вдоль свободной поверхности в вертикальном направлении. На Рис.6.12 представлена временная развертка температурного сигнала, измеренного на высоте $z = L/2$ (левый столбец) и изображения АС (вид сверху, правый столбец), полученные синхронизированными видеокамерами в различные моменты времени. Видно, что распространение гидротермической волны в азимутальном направлении вызывает гармонические изменения температуры в точке расположения термопары. Покадровый анализ видеозаписи показывает, что минимум температуры, холодная фаза гидротермической волны, в гармоническом сигнале совпадает с прохождением поверхностной части АС. Максимум температуры, горячая фаза гидротермической волны, регистрируется в моменты, когда АС движется в самой дальней точке возвратного течения. Таким образом, распределение температуры в азимутальном направлении коррелирует с пространственным расположением АС, указывая на их причинно-следственную связь.

Об этом же свидетельствуют и наблюдения с бокового направления. На Рис.6.13а приведена фотография вида сбоку жидкого мостика в момент прохождения поверхностной части АС. В поле зрения камеры расположена термопара, сигнал с которой в этот же момент времени представлен на Рис.6.13б. Видна корреляция пространственного расположения температурной волны и АС. Относительное расположение АС и температурных минимумов и максимумов было измерено для нескольких вертикальных положений спая термопары. На Рис.6.13в представлена развертка части боковой поверхности жидкого мостика в (z, φ) -плоскости. Точками отмечены положения максимумов и минимумов температуры в определенный момент времени, которые указывают форму и расположение теплой и холодной фазы гидротермической волны. Здесь же приведена проекция АС на (z, φ) -плоскость в тот же момент времени. На участке $a - b$ структура движется на поверхности, в то время как участки, расположенные слева и справа от этих точек расположены в объеме и движутся с возвратным течением.

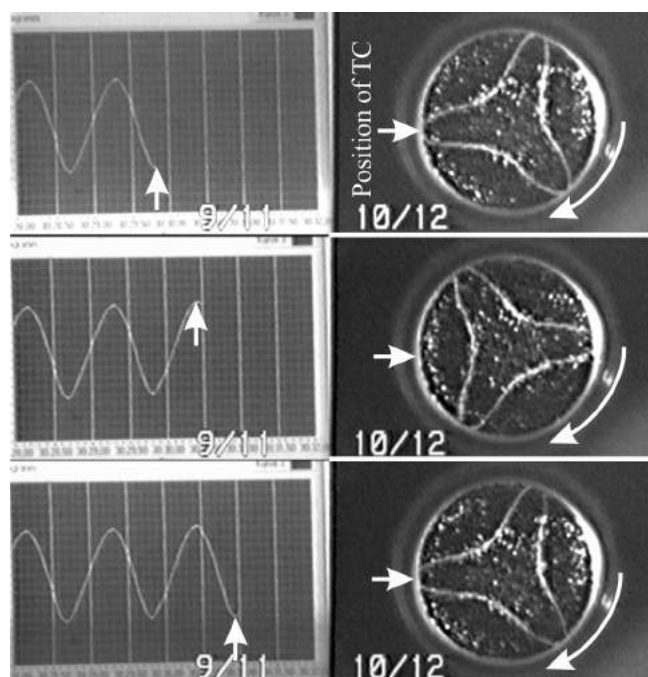


Рис. 6.12. Временная развертка температурного сигнала, измеренного на высоте $z = L/2$ (левый столбец) и изображения АС (вид сверху, правый столбец), полученные синхронизированными видеокамерами в различные моменты времени.

Анализ температурного распределения на поверхности раздела показывает, что кроме аксиального градиента температуры, задаваемого температурными граничными условиями на удерживающих цилиндрах, в каждой точке на свободной поверхности существует азимутальный температурный градиент, связанный с гидротермической волной, который 2π раз меняет свое направление при полном обходе поверхности в азимутальном направлении. Наличие азимутальной компоненты должно приводить к отклонению линий тока на поверхности от аксиального направления. Для изучения структуры движения на поверхности световой нож был направлен по касательной к границе раздела. На Рис.6.13г и Рис.6.13д приведены трековые фотографии течения на свободной поверхности в моменты прохождения холодной и горячей фаз волны, положения которых указывает изображение спая термопары, расположенного в кадре. Фотографии сделаны в начальный период формирования АС, когда достаточное количество визуализирующих частиц распределены в объеме вне АС. Хорошо видно, что наличие азимутальной неоднородности температуры приводит к по-

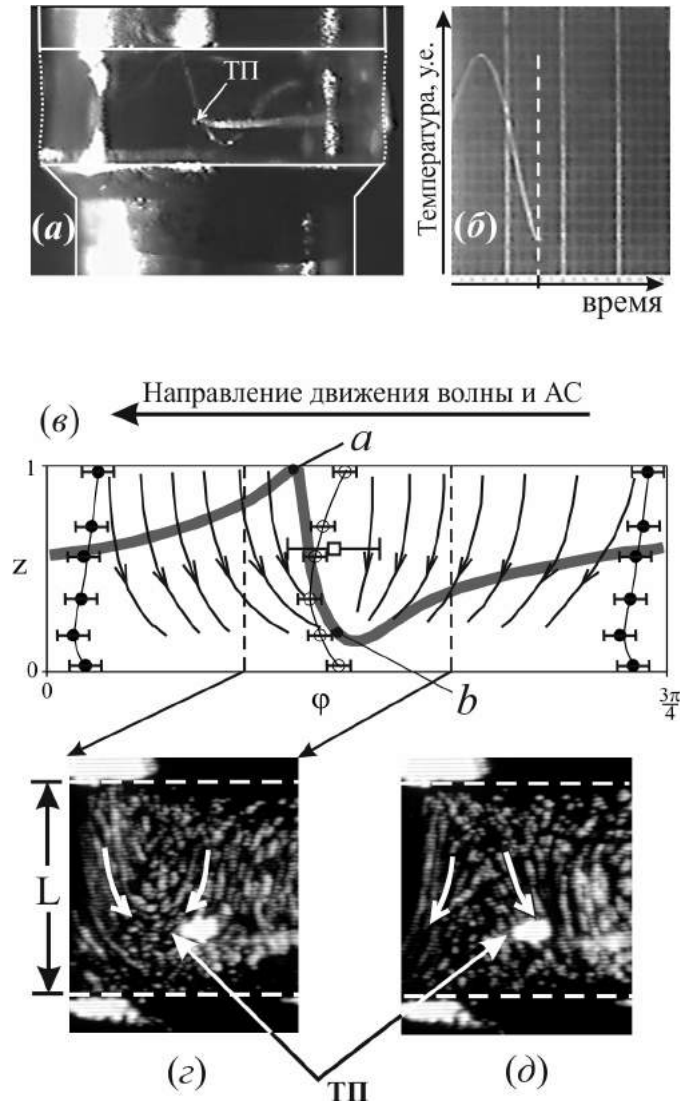


Рис. 6.13. Иллюстрация пространственно-временной взаимосвязи гидротермической волны и АС. (а) – фотография (вид сбоку) жидкого мостика в момент прохождения поверхностной части АС. В поле зрения камеры расположена термопара, сигнал с которой в этот же момент времени представлен на (б). (в) – развертка части боковой поверхности жидкого мостика в (z, φ) -плоскости. Жирная линия – проекция АС на свободную поверхность. Закрытыми и открытыми символами обозначено положение максимумов и минимумов температуры на поверхности в один момент времени. Сплошными линиями схематически изображена структура конвективного течения на поверхности. (г) и (д) – трековые снимки течения на свободной поверхности в момент прохождения холодной и горячей фаз, соответственно.

явлению азимутальной составляющей скорости жидкости на поверхности. Причем, судя по отклонению треков от аксиального направления, аксиаль-

ная и азимутальная составляющие градиента температуры на поверхности сопоставимы по величине. В момент прохождения холодной фазы волны (Рис.6.13 ϵ) жидкость на поверхности, в соответствии с эффектом Марангони, движется по направлению к источнику холода. При этом большинство линий тока сходится в окрестности точки, расположенной вблизи нижней, холодной границы мостика, где жидкость инжектируется в объем (точка b на Рис.6.13 ϵ). Именно в этом месте со временем формируется точка входа АС с поверхности в объем жидкости. Прохождение горячей фазы волны (Рис.6.13 δ), наоборот, сопровождается отклонением линий тока в обе стороны от источника тепла. Попеременное прохождение холодной и горячей фаз волны приводит к постепенному смещению элементов жидкости, в момент их нахождения на поверхности, из более теплых поверхностных областей к более холодным, где они, в конечном итоге, проходят через точку инъекции. Таким образом, термокапиллярный механизм, связанный с наличием гидротермической волны, является тем механизмом, который обеспечивает азимутальную миграцию взвешенных частиц вместе с элементом жидкости.

6.2.3. Время формирования аккумуляционных структур в зависимости от свойств частиц.

Для выяснения физического механизма формирования АС была проведена серия экспериментов с целью изучения влияния плотности, размеров и формы частиц на время формирования АС. Все представленные ниже эксперименты были проведены в расплаве $Na_{1-x}Cs_xNO_3$. Варьирование состава смеси и используемых частиц позволяло изменять соотношение плотностей материала частиц и жидкости $\alpha = \rho_p/\rho_f$ в широких пределах. Все эксперименты проводились при одном и том же значении соотношения геометрических размеров $A = 1.15$ и числе Марангони $Ma = 1.7 \cdot 10^4$, которые соответствовали центру области существования АС $m = 2$ с наиболее оптимальными условиями формирования структуры. Таким образом, в каждом эксперименте обеспечивалось постоянство гидродинамических условий, что позволяло исследовать только влияние свойств частиц на условия формирования АС.

На Рис.6.14а представлена зависимость времени формирования АС τ_f в жидком мостике из расплава чистого нитрата натрия от размера частиц из синтетического корунда, что соответствует $\alpha = 1.88$. Видно, что наблюдаемая зависимость носит немонотонный характер. При $d < 25$ мкм время формирования быстро убывает с ростом диаметра частицы. При дальнейшем увеличении размера включений время начинает медленно увеличиваться. Аналогичный характер зависимости наблюдается, если в эксперименте измерять время полного формирования τ_{ff} , за которое большая часть частиц оказывается внутри АС (Рис.6.14б). Физически при этом сравнивался контраст на изображении между областями, содержащими участок АС, и вне ее. Явное подобие зависимостей, полученных на ранних и поздних временах, указывает на то, что один и тот же механизм аккумуляции включений действует на всем протяжении процесса формирования АС.

Наблюдения показали, что положение минимума зависит от соотношения плотностей материала частиц и жидкости. На Рис.6.15 приведена зависимость времени формирования АС от размера кварцевых частиц для трех различных соотношений плотностей. Видно, что по мере приближения значений плотностей друг к другу минимум становится все менее выраженным и, наконец, совсем пропадает в случае одинаковой плотности частиц и жидкости. Для нейтрально плавучих частиц время формирования продолжает убывать с ростом их размера при любых значениях диаметра. Такой вид зависимостей позволяет предположить, что рост времени формирования, наблюдаемый при больших размерах включений, связан с их седиментацией. Действительно, осаждение частиц в поле сил тяжести должно приводить к их переходу с линии тока, соответствующей АС, на соседние линии тока и, следовательно, к размытию структуры. Чем более плотные частицы по отношению к жидкости, тем при меньших размерах начинает проявлять себя седиментационный механизм. Это, в частности, объясняет меньшие значения диаметра корундовых частиц, при которых наблюдается минимум времени формирования, в сравнении с аналогичными значениями, измеренными для кварцевых частиц, которые обладают существенно меньшей плотностью. Таким образом, для выяснения физиче-

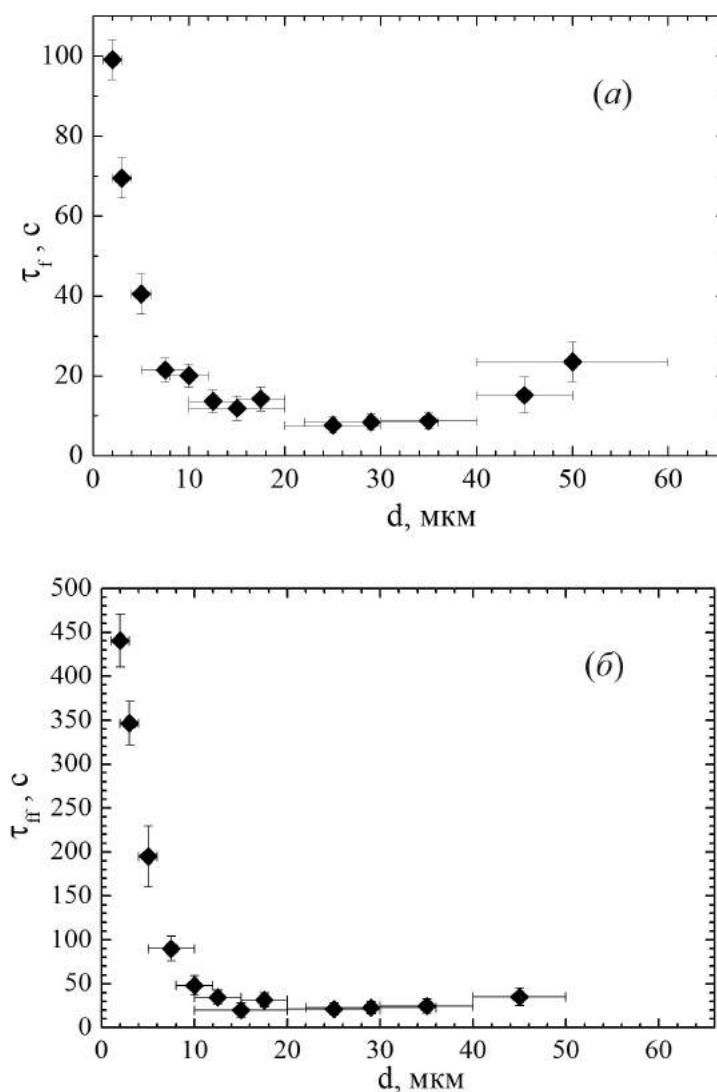


Рис. 6.14. Зависимость времени формирования АС τ_f , когда регистрируются первые заметные признаки появления структуры (а), и времени полного формирования τ_{ff} , за которое большая часть частиц оказывается внутри структуры (б), от размера частиц (синтетический корунд $\alpha = 1.88$).

ского механизма, ответственного за аккумуляцию включений, необходимо брать в рассмотрение только убывающий участок зависимости от размера частиц.

Анализ Рис.6.15 показывает, что время формирования АС меньше для частиц с близкой к жидкости плотностью. Для более детального изучения данного вопроса были исследована зависимость скорости формирования от отношения плотностей в широком диапазоне значений данного параметра как для более плотных, так и менее плотных частиц по отношению к жидкости. На Рис.6.16 представлена такая зависимость для раз-

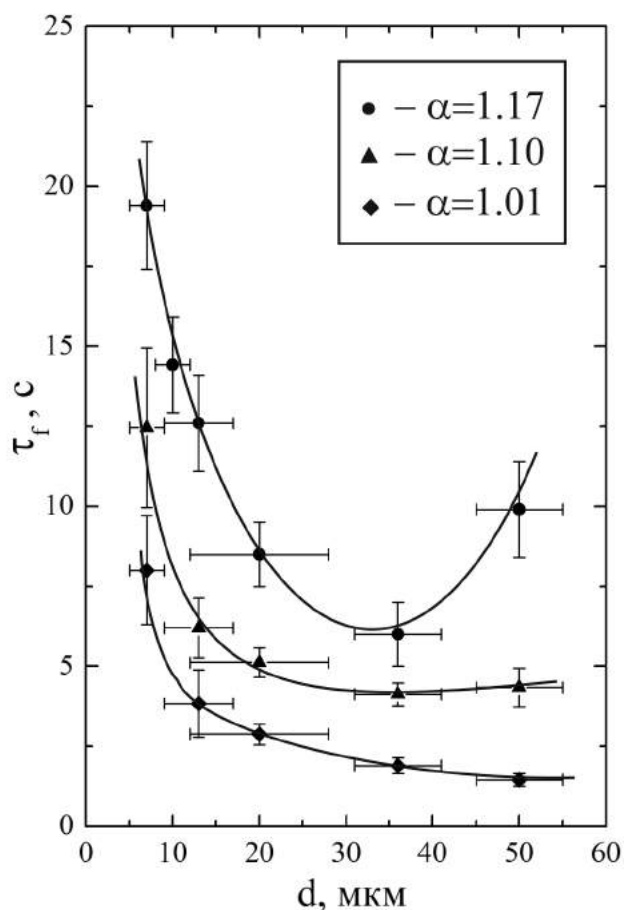


Рис. 6.15. Зависимость времени формирования АС от размера частиц (кварцевое стекло) для трех различных значений соотношения плотностей материала частиц и жидкости.

личных пар жидкость-частицы для фиксированного размера включений. Видно, что частицы с нейтральной плавучестью формируют АС быстрее всего. По мере увеличения разности плотностей время формирования увеличивается как для более плотных, так и менее плотных по отношению к жидкости частиц.

Исследования зависимости времени формирования от формы взвешенных включений показали, что применение несферических частиц существенно увеличивает это время. Так, например, использование включений в форме «чечевицы» с отношением линейных размеров к толщине 4:1 увеличивает время формирования АС примерно на порядок. В случае же включений в форме тонких пластинок с отношением линейных размеров к толщине 10:1 и больше АС не формировались вплоть до их полного осаждения.

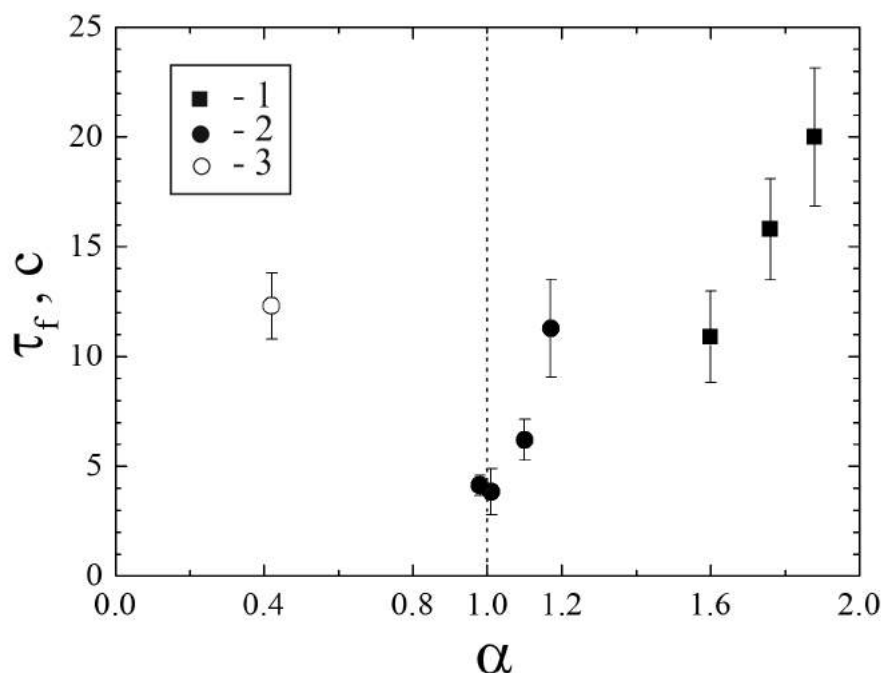


Рис. 6.16. Зависимость времени формирования АС от соотношения плотностей материала частиц и жидкости для частиц одинакового размера. Точками на графике обозначены результаты экспериментов с частицами из различного материала: 1 – синтетический корунд, 2 – кварцевое стекло, 3 – полые стеклянные сферы.

6.2.4. Исследование влияния гравитации на формирование аккумуляционных структур.

Для изучения влияния гравитации на процесс формирования АС были поставлены эксперименты в условиях микрогравитации. Исследования были проведены в рамках совместного проекта Европейского космического агентства и Немецкого аэрокосмического агентства MAXUS-6 (эксперимент TEM 06-27 «Dynamics of suspended particles in periodic vortex flow») на борту беспилотной исследовательской ракеты, совершающей суборбитальный полет по баллистической траектории. Схема полета представлена на Рис.6.17. Ракета запускалась со специального стартового стола (космодром Esrange Space Center, Кируна, Швеция) и разгонялась до скорости около 3.5 км/сек. Примерно на высоте 100 км происходила отстыковка отработавшего двигательного блока и далее исследовательский блок двигался по инерции, достигая в апогее высоты около 750 км. На возвратной части

траектории, на высоте около 100 км, происходило включение тормозной системы и далее ракета на парашюте опускалась недалеко от места старта. Общая продолжительность условий микрогравитации (между моментами выключения двигателей и включения тормозной системы) составляла, примерно, 12 минут. Управление экспериментом осуществлялось дистанционно из центра управления полетом, расположенном на космодроме.

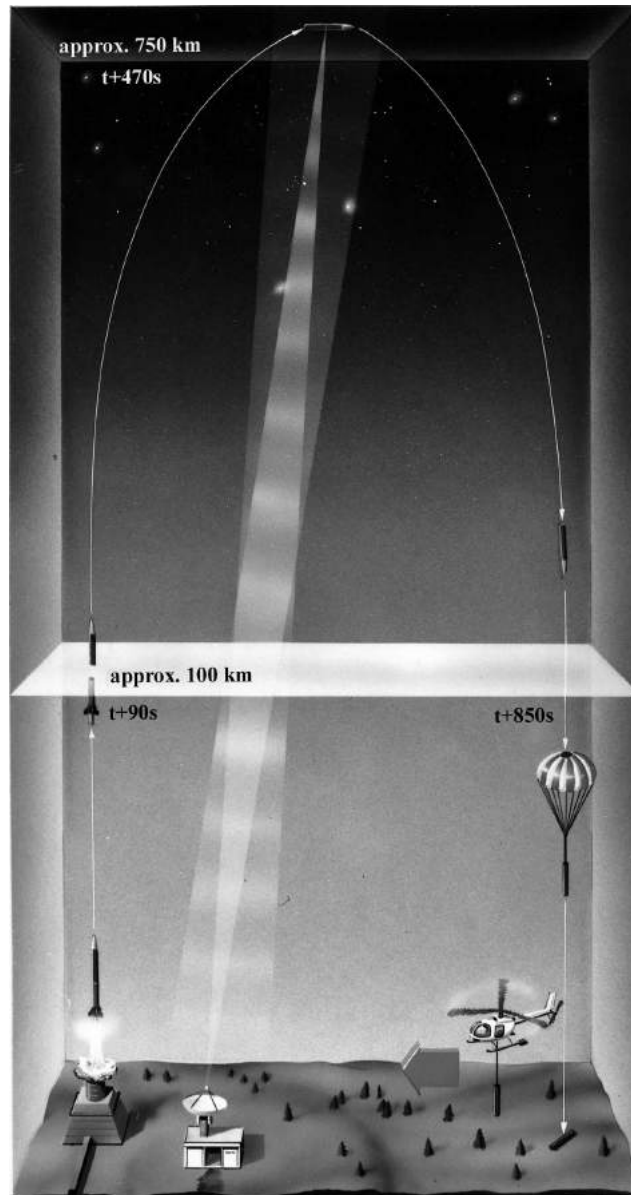


Рис. 6.17. Схема суборбитального полета исследовательской ракеты во время эксперимента по проекту MAXUS-6.

Для проведения исследований были созданы две одинаковые экспериментальные установки. На первой проводилась подготовительная, наземная часть экспериментов, отрабатывались измерительные методики и

программа проведения экспериментов в условиях микрогравитации. Тестовые эксперименты на второй установке в сборе с системами управления и телеметрии были проведены в сборочном цехе на космодроме за неделю до старта. Все изменения в конструкции и материалах вносились одновременно в оба экземпляра установки. Экспериментальная установка в целом повторяла описанную выше в разделе 6.1.1 для работы с *n*-деканом. Отличие состояло в способе поддержания постоянной температуры на удерживающих цилиндрах. Для этих целей были использованы элементы Пельтье. В качестве рабочей жидкости также использовался *n*-декан. В жидкость были добавлены частицы синтетического корунда диаметром 15 мкм. Частицы помещались в канал внутри металлического удерживающего цилиндра, через который осуществлялась подача жидкости в пространство между цилиндрами. Увлекаемые потоком частицы формировали однородную взвесь при создании жидкого мостика. Три *Ni-Cr-Ni* термопары, спаи которых были расположены на высоте $L/2$, на расстоянии 0.1 мм от свободной поверхности и в трех различных азимутальных координатах $\varphi_1 = 0^\circ$, $\varphi_2 = +40^\circ$, $\varphi_3 = -60^\circ$, были использованы для измерения частоты и направления движения гидротермической волны. Синхронизация записи сигнала с термопар и изображения с двух видеокамер (вид сверху через прозрачный сапфировый цилиндр и вид сбоку) позволяли исследовать относительное положение гидротермической волны и АС.

Изображение аккумуляционной структуры с $m = 3$, обнаруженной в условиях микрогравитации, представлено на Рис.6.18. Здесь же для сравнения приведено изображение АС, полученной в наземном эксперименте при одинаковых условиях: $A = 0.63$, $\Delta T = 12K$. Данные условия были выбраны в ходе проведения предварительных экспериментов в лаборатории, как соответствующие наиболее быстрому формированию АС, что составляло при обычном уровне гравитации (15 ± 1) с. Время формирования АС, измеренное в условиях микрогравитации, оказалось меньше и составило (11 ± 1) с.

Сравнение изображений, представленных на Рис.6.18, демонстрирует небольшие отличия в форме АС, полученных при разных уровнях гравитации. Структура, наблюдаемая в условиях микрогравитации, проникает

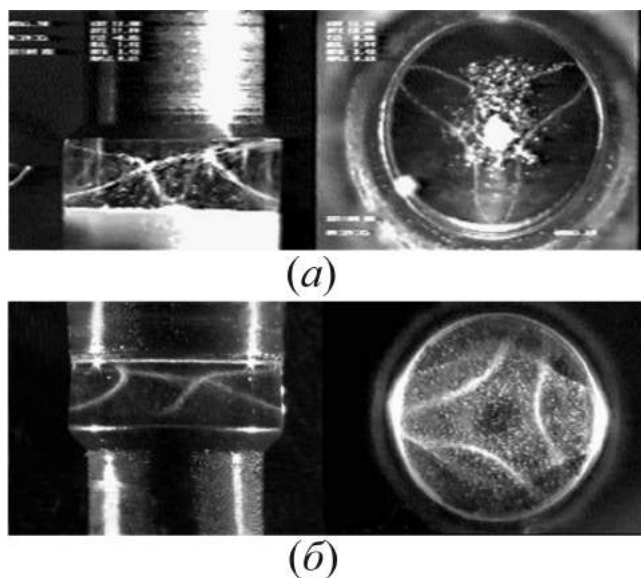


Рис. 6.18. Изображение АС, полученных в (а) условиях микрогравитации и (б) в наземных условиях.

глубже внутрь жидкого мостика в радиальном направлении. Поскольку, как было показано выше, АС связана со структурой течения, то это означает, что и возвратное течение проникает ближе к центру жидкого мостика. Последний факт хорошо согласуется с результатами полученных ранее численных расчетов [223], в которых была продемонстрирована большая радиальная протяженность конвективного вихря в отсутствие гравитации по сравнению с лабораторными экспериментами, соответствующими жидкому мостику, подогреваемому сверху. Наблюдаемое различие можно объяснить стабилизирующим влиянием устойчивой стратификации плотности, обусловленной нагревом сверху. В центральной части жидкого мостика возвратное течение ослабляется силой Архимеда, что приводит к вытеснению конвективного вихря ближе к границе раздела. На самой свободной поверхности встречное направление силы Архимеда и термокапиллярной силы также ведет к уменьшению интенсивности вихря, что дополнительно уменьшает его радиальную протяженность.

Следует также обратить внимание, что толщина АС, полученной в условиях микрогравитации (см. Рис.6.18а), меньше аналогичной, наблюдаемой в лаборатории на Земле (см. Рис.6.18б). Объяснение этому факту, а также более быстрому формированию АС при пониженной гравитации будет дано ниже при обсуждении физического механизма формирования

АС.

6.3. Предлагаемый физический механизм формирования аккумуляционных структур.

Искомый физический механизм должен удовлетворять следующим требованиям:

1. Приводить к перераспределению частиц в радиальном направлении. Первоначально однородно распределенные в объеме частицы оказываются все на линии тока, проходящей через свободную поверхность, в конце процесса формирования АС.
2. Приводить к перераспределению частиц в азимутальном направлении. На момент завершения процесса формирования АС все частицы на поверхности локализованы в окрестностях m областей (см. Рис.6.6), тогда как до формирования АС были распределены равномерно в азимутальном направлении.
3. Объяснять уменьшение времени формирования АС при увеличении размера частиц.
4. Объяснять факт наименьшего времени формирования АС для нейтрально плавучих частиц.
5. Объяснять увеличение времени формирования для частиц в форме сплюснутого эллипсоида (форма «чечевица» или «чешуйка»).
6. Должен обеспечивать условия формирования АС в отсутствие гравитации.
7. Должен быть достаточно эффективным, чтобы обеспечивать формирование АС за времена порядка нескольких секунд (время первого проявления структуры).

Прежде чем приступить к обсуждению механизма формирования наблюдаемых в экспериментах структур, оценим величину числа Стокса. Данный безразмерный параметр, показывающий соотношение инертных и вязких сил, действующих на частицу в потоке, может быть определен, как $St = \tau_p / \tau_{fl}$, где τ_p - характерное время релаксации частицы (определяемое, как время полной остановки движущейся частицы, на которую не

действуют внешние силы кроме вязких сил), τ_{fl} - характерное время изменения скорости потока. При ламинарном режиме обтекания (малые числа Рейнолдса) релаксационное время может быть вычислено по формуле: $\tau_p = \alpha d^2 / 18\nu$, где $\alpha = \rho_p / \rho_f$ - отношение плотностей материала частицы и жидкости, d - диаметр частицы, ν - кинематическая вязкость жидкости. Для самых тяжелых и больших частиц, примененных в эксперименте ($\alpha = 4.8$, $d = 50$ мкм) получаем $\tau_p = 7 \cdot 10^{-4}$ с. В качестве характерного времени изменения скорости потока можно рассмотреть три различных варианта. Первый связан с изменением скорости жидкости на поверхности за счет действия термокапиллярной силы. Из наблюдений за движением жидкости известно, что вблизи верхней горячей границы аксиальная скорость жидкости v_z на границе раздела увеличивается от нуля до, примерно, 3 см/с на участке длиной около 0.5 мм. Тогда искомое время может быть найдено $\tau_{fl} = \left| \frac{dv_z}{dz} \right|^{-1} = 0.02$ с и число Стокса $St \approx 0.03 \ll 1$. Другое характерное время связано с орбитальным движением жидкости в конвективном торе. Для случая гидротермической волны с $m = 2$ это составляет около 2 секунд. Соответствующее число Стокса $St \approx 3 \cdot 10^{-4} \ll 1$. Заметим, что движение жидкости в конвективном торе сильно неравномерное как по величине скорости, так и по кривизне траектории элементов жидкости. Оценим верхний предел числа Стокса для наиболее быстрого и искривленного участка, расположенного вблизи верхней горячей границы. Анализ видео показывает, что при средней скорости движения, примерно, 1 см/с жидкость движется по траектории с радиусом кривизны около 0.02 см. Соответствующее число Стокса $St \approx 0.03 \ll 1$.

Из приведенных выше оценок видно, что даже для самых больших и тяжелых, относительно жидкости, частиц величина числа Стокса оказывается много меньше единицы. Это значит, что для всех примененных в экспериментах частиц инертные силы много меньше вязких сил, и, следовательно, частицы всегда следуют потоку.

Далее оценим величину центробежной силы, действующей на частицы с отличной от жидкости плотностью при их движении в конвективном вихре. Из равенства центробежной $F_c = \Delta\rho\pi d^3 v^2 / 6r$ (v - средняя скорость движения частицы при движении в конвективном вихре радиуса r ,

$\Delta\rho$ - разность плотностей материала частицы и жидкости) и Стоксовой $F_s = 3\pi\eta dv_c$ (η - динамическая вязкость жидкости) сил, можно оценить скорость центробежного дрейфа частицы v_c . Для самых больших и тяжелых частиц получаем скорость около 1 мкм/с. Т.е. для выхода на линию тока, проходящую через поверхность раздела (пункт 1, здесь и далее из списка требований к механизму, приведенного выше), частицам понадобится время порядка нескольких сотен секунд. Видно, что столь маленькая скорость не может объяснить наблюдаемые в эксперименте времена формирования АС. Дополнительно, данный механизм не годится для объяснения формирования АС из нейтрально плавучих частиц (пункт 4) и частиц с меньшей, чем у жидкости, плотностью.

Наблюдаемая в экспериментах аккумуляция твердых включений может быть успешно объяснена взаимодействием частиц со сдвиговым течением, вместе с которым они движутся. Данное явление достаточно интенсивно изучалось в 60-х – 80-х годах прошлого века в связи с приложениями в области реологии суспензий. Исследователями было отмечено отклонение экспериментально измеренных значений вязкости суспензий, содержащих твердые включения, от предсказанных ранее в теоретических работах Эйнштейна [224] и позднее Кригера [225]. Наблюдаемые различия были объяснены поперечным дрейфом частиц, приводящим к перераспределению концентрации и, как следствие, к отклонению профиля скорости от рассматриваемого в теории [226, 227]. Миграция частиц поперек потока обусловлена как взаимодействием каждой частицы со сдвиговым течением, так и межчастичным взаимодействием в случае концентрированных суспензий. В рассматриваемой в данной главе ситуации второй механизм можно опустить в силу малых значений концентрации частиц, используемых в эксперименте. Первый механизм, возникающий в силу взаимодействия локального поля скорости, возникающего вблизи частицы, и глобального поля скорости, характеризующего само течение, приводит к боковому дрейфу отдельной частицы, скорость и направление которого зависят как от характеристик частицы, так и от свойств течения. Проблема была исследована теоретически для различных типов течения [228–234]. В частности, было показано, что частица с нейтральной плавучестью, движущаяся в

неограниченном сдвиговом течении, будет всегда смещаться в направлении увеличения скорости [230, 231]. Если плотность частицы отличается от плотности жидкости, то направление поперечного дрейфа будет зависеть от того, отстаёт частица от потока или обгоняет его [229]. Вблизи твердой границы возникает дополнительная отталкивающая сила, связанная с асимметрией поля скорости вблизи частицы [230, 231]. Баланс сил, действующих на частицу, хорошо объяснял аккумуляцию частиц в каналах на некотором выделенном расстоянии между стенками и центром канала [235].

В рассматриваемой ситуации именно указанные выше силы способны привести к наблюдаемому в экспериментах перераспределению частиц в радиальном направлении. Действительно, между центром конвективного вихря, прижатым к свободной поверхности, и границей раздела формируется достаточно узкая зона сдвигового течения толщиной ~ 300 мкм, внутри которой скорость конвективного движения меняется от ~ 3 см/с на поверхности жидкости до нуля в центре вихря. Профиль скорости, учитывая термокапиллярную природу движения, можно, в первом приближении, считать линейным. В таком потоке на нейтрально плавучие частицы будет действовать сила, направленная к свободной поверхности. Случай частиц с отличной от жидкости плотностью будет дополнительно обсужден ниже. Для оценки скорости поперечного дрейфа частицы в таком потоке воспользуемся формулой, приведенной в работе Хо и Лиля [230] для случая течения Стокса:

$$V_d = \frac{V_m^2 \kappa^3 G}{6\pi\nu}$$

Здесь V_m - характерная скорость потока, $\kappa = d/\delta$ - отношение размера частицы к поперечному размеру канала, ν - кинематическая вязкость жидкости, G - константа, величина которой зависит от геометрии канала и профиля скорости и которая в рассматриваемом случае $O(1)$. Если взять в качестве V_m скорость на поверхности, то для частиц размером 20 мкм получим скорость дрейфа, примерно, 100 мкм/с. Учитывая, что время прохождения вблизи поверхности составляет, примерно, 0.1 с, то за каждый период частица сместится на 10 мкм по направлению к поверхности жидкости. Та-

ким образом, полностью все частицы окажутся на внешней линии тока, проходящей через границу раздела, через, примерно, 30 секунд, что хорошо согласуется с результатами измерения времени полного формирования АС, представленными на Рис.6.14б. Для первой фиксации факта формирования АС достаточно, чтобы 10 – 20% частиц перешли на внешнюю линию тока, что создаст достаточный контраст для визуального определения АС. Согласно приведенной выше оценке такое событие произойдет через 3-6 секунд, что также неплохо согласуется с результатами наблюдений, показывающими, что АС из нейтрально плавучих частиц становится видимой спустя 4-5 секунд после перемешивания (см. Рис.6.15 и Рис.6.16).

Таким образом, предложенный выше механизм позволяет объяснить радиальное перераспределение частиц со временем (пункт 1), в результате которого приповерхностный слой жидкости достаточно быстро оказывается обогащенным частицами. Наличие гидротермической волны на свободной поверхности приводит к появлению азимутальной составляющей градиента температуры и, как следствие, азимутальной составляющей скорости на границе раздела (см. 6.2.2). В результате, в течение каждого периода жидкость на поверхности, вместе с частицами, смещается в азимутальном направлении от горячей к холодной фазе волны, обеспечивая, тем самым, искомый механизм азимутального перераспределения частиц. При этом, участок поверхности, соответствующий холодной фазе волны, как видно из Рис.6.13г, выступает в роли аттрактора, собирая жидкость с окружающих участков поверхности и впрыскивая ее в ограниченной области, расположенной вблизи холодной границы мостика. Именно эта область, названная ранее точкой инжектирования, и дает начало формированию АС.

Становится понятным и происхождение резонансного характера явления, обсуждаемого в разделе 6.2.1. Инжектируемая в объем жидкость, обогащенная частицами, движется вместе с возвратной частью течения и вновь возвращается на поверхность вблизи верхнего горячего цилиндра. Если это произойдет в момент прохождения следующей холодной фазы гидротермической волны, то обогащенная жидкость будет вновь инжектирована, что только усилит формирование АС. Если же период волны и орбитального движения частиц вместе с жидкостью не совпадают, то

инжектироваться будут каждый раз разные элементы жидкости, что замедлит или сделает невозможным процесс формирования АС. Центры областей существования АС на карте режимов (см. Рис.6.4) соответствуют условию равенства периодов и, соответственно, наискорейшему формированию структуры. Изменение величины числа Марангони или соотношения геометрических размеров мостика неизбежно приводит к изменению периодов и, как следствие, ухудшению условий формирования структуры (Рис.6.10).

Интересно отметить, что механизм взаимодействия частиц со сдвиговым течением действует не только в конвективном вихре, но и в момент инжектирования жидкости. Действительно, поперек струи имеется распределение скорости с максимумом на оси струи, что должно приводить к поперечному дрейфу частиц. Оценивая поперечный размер струи в 300 мкм, получаем, что, за время действия силы, частицы с размером 20 мкм будут смещаться, примерно, на расстояние, равное своему размеру, к оси струи, обеспечивая эффективный механизм самофокусировки частиц в потоке.

Предложенный выше механизм формирования АС, базирующийся на радиальном перераспределении частиц за счет миграции частиц в сдвиговом потоке (пункт 1) и азимутальной аккумуляции обогащенной частицами жидкости (пункт 2), успешно объясняет полученные экспериментальные результаты. В частности, время формирования структуры хорошо согласуется с оценками, основанными на скорости поперечного дрейфа частиц в конвективном вихре (пункт 7). Полученная в экспериментах зависимость $\tau_f \sim d^{-n}$ (пункт 3) объясняется увеличением скорости дрейфа с ростом размера частицы. Этим же можно объяснить и наблюдаемое увеличение времени формирования для частиц в форме «чечевицы» или «чешуйки» (пункт 5). Такие частицы ориентируются вдоль потока так, что при расчете скорости дрейфа необходимо учитывать их наименьший размер (толщину), что резко увеличивает расчетное время формирования.

Поскольку в основе предложенного механизма лежит термокапиллярный конвективный механизм, то для формирования АС не требуется наличие гравитации (пункт 6). Наоборот, сила тяжести выступает в роли дестабилизирующего фактора, замедляющего появление структуры. Выше

уже было замечено, что для нейтрально плавучих частиц время формирования продолжает убывать с ростом их размера при любых значениях диаметра, тогда как для частиц с отличной от жидкости плотностью убывающая в области малых размеров зависимость сменяется возрастающей для частиц большего размера (см. Рис.6.14 и Рис.6.15). Данный факт объясняется седиментационными процессами. Осаждение более тяжелых или всплывание более легких частиц в поле сил тяжести приводит к их переходу с линии тока, соответствующей АС, на соседние линии тока и, следовательно, к размытию структуры даже в условиях резонанса. Именно данным фактом объясняется наименьшее время формирования, наблюдаемое для нейтрально плавучих частиц (пункт 4), и меньшее время формирования, измеренное при прочих равных в условиях микрогравитации. Чем больше разность плотностей и, следовательно, скорость осаждения (всплытия), тем большее время требуется на формирование структуры, и тем более размытой будет сама структура. Последнее объясняет меньшую толщину аккумуляционной структуры в случае микрогравитации, где нет механизма размывания, связанного с седиментацией.

Интересно также отметить, что зависимость времени формирования АС от разности плотностей материала частиц и жидкости, представленная на Рис.6.16, не симметрична. Время формирования растет быстрее для более плотных частиц, чем для менее плотных, хотя механизм седиментации предсказывает симметричный вид зависимости. Причина данного поведения лежит в проявлении силы Заффмана [229], возникающей при наличии относительного движения частицы и потока. В этом случае кроме силы, описанной Хо и Лилом, на частицу действует дополнительная сила, также приводящая к ее поперечному дрейфу. При этом направление дрейфа будет зависеть от того, отстаёт частица от потока или обгоняет его. В рассматриваемом случае более легкие частицы при движении в конвективном вихре будут отклоняться силой Заффмана в направлении градиента скорости, т.е. мигрировать в сторону поверхности жидкости. Тяжелые частицы, наоборот, будут получать дополнительное смещение в сторону от поверхности. Так как скорость седиментации мала по сравнению со скоростью потока, то величина силы Заффмана оказывается невелика. Оценки ско-

рости поперечного дрейфа для самых тяжелых частиц дают значение скорости порядка нескольких мкм/с, что мало по сравнению со скоростью за счет силы, описанной Хо и Лилом. Однако, данная поправка вполне может привести к наблюдаемой асимметрии зависимости времени формирования АС.

6.4. Влияние поверхностно-активной примеси на структуру термокапиллярного течения и формирование аккумуляционных структур.

В теоретических исследованиях [177, 179, 198], посвященных изучению вопросов устойчивости основного течения в жидком мостике, на основе линейного анализа было найдены критические значения числа Марангони при различных параметрах задачи, а также определена структура наиболее опасного возмущения. В частности, было показано, что в результате неустойчивости возникает трехмерное нестационарное течение в виде двух гидротермических волн, распространяющихся в противоположных направлениях. Причем в рамках линейной теории ответить на вопрос, какая из волновых конфигураций, стоячая или бегущая волна, окажется наиболее устойчивой, было невозможно. Для ответа на данный вопрос позднее были предприняты дополнительные теоретические исследования, в которых задача была решена численными методами на основе решения системы уравнений в полной, нелинейной, постановке, что позволило проследить эволюцию указанных выше типов возмущений [236, 237]. Было показано, что в результате потери устойчивости основным течением в надкритической области параметров всегда устанавливается вторичное течение в виде стоячей волны, возникающее как результат суперпозиции двух противоположных бегущих волн. Однако, такая волновая конфигурация оказывается неустойчивой. При неизменных параметрах задачи через некоторое время одна из волн затухает, и в жидком мостике остается только бегущая волна противоположного направления. Таким образом, стоячая волна является лишь переходным режимом к волновой конфигурации в виде бегущей волны. Время существования переходного режима уменьшается при увели-

чении величины надкритичности и соотношения геометрических размеров жидкого мостика [237].

Сравнение результатов, полученных теоретическими и численными методами, с результатами экспериментальных исследований не всегда демонстрирует хорошее согласие. Так, например, в экспериментах Швабе [209, 210, 222] наблюдались обе волновые конфигурации в зависимости от используемой жидкости. В опытах с жидкими мостиками из октадекана ($C_{24}H_{50}$) и тетратриаконтана ($C_{36}H_{74}$) в надкритической области развивалась только стоячая волна, тогда как при использовании расплавов солей (нитрата натрия и хлорида калия) всегда устанавливалось вторичное течение в виде бегущей волны. В экспериментах с силиконовым маслом, проведенных как в лаборатории, так и в условиях микрогравитации [238], были обнаружены стоячие волны. Сравнивая полученные результаты с наблюдениями группы Швабе, авторы исследования делают вывод, что неустойчивость в виде стоячей волны характерна для жидкостей с большими значениями числа Прандтля (октадекан – $Pr = 49$, тетратриаконтан – $Pr = 65$, силиконовое масло с вязкостью 5 сСт – $Pr = 74$), тогда как в жидкостях с низким значением числа Прандтля (расплавы солей) должна развиваться бегущая волна. Более поздние эксперименты этой же группы [202] показали, что при увеличении надкритичности обнаруженный режим стоячей волны становится переходным, т.е. сменяется через некоторое время, при неизменных параметрах эксперимента, на бегущую волну. При этом время существования переходного режима, измеренное в экспериментах на Земле и в условиях микрогравитации, а также полученное в ходе численного эксперимента оказались порядка нескольких минут. Иная ситуация наблюдалась в экспериментах Кавамуры [206, 239], использовавшего также силиконовое масло в качестве рабочей жидкости. В узкой центральной части области существования течения с определенным волновым числом, т.е. вблизи $A \approx A^*$ (см. Раздел 6.2.1) наблюдалась бегущая волна. В широком диапазоне значений между центрами областей всегда наблюдалась устойчивая стоячая волна. Таким образом, результаты экспериментальных исследований демонстрируют широкий спектр возможных сценариев неустойчивости даже в пределах одной и той же использованной жидкости.

Совсем иная ситуация наблюдалась в экспериментах, представленных в диссертации. Для обеих использованных жидкостей при любом значении параметров на карте режимов в области существования колебательного режима конвекции (см. Рис.6.4) сразу после перемешивания устанавливался режим стоячей волны, который спустя короткое время сменялся на бегущую волну. Стоячая волна всегда реализовывалась, как переходный режим по отношению к основному устойчивому режиму бегущей волны, как было предсказано в теоретических исследованиях. Длительность переходного режима зависела от места на карте режимов. Непосредственно вблизи границы между областями с разными значениями волнового числа переходный режим длился в среднем 10 с. При этом во время переходного процесса могло меняться волновое число, что увеличивало время установления бегущей волны. При всех остальных значениях параметров внутри каждой области длительность переходного режима составляла не более 1-3 с. Исключение составляли эксперименты, проводимые вблизи границы устойчивости, т.е. при небольших значениях надкритичности, где типичное время перехода к бегущей волне составляло 15-30 с. Ни в одном из проведенных экспериментов режим стоячей волны не появлялся в виде устойчивой волновой конфигурации, всегда являясь лишь неустойчивым переходным режимом. Таким образом, представленные в данной главе результаты экспериментов резко отличаются от большинства полученных ранее другими группами исследователей. Исключение составляют лишь ранние эксперименты Швабе [209, 210, 222], проведенные с расплавами солей, где бегущая волна также была единственной устойчивой конфигурацией.

Для сравнения с результатами предыдущих исследований в диссертации были проведены эксперименты с жидкими мостиками из силиконового масла. Эксперименты показали, что стоячая волна реализуется всегда только в виде переходного режима к бегущей волне. Полученные результаты указывают на ошибочность предположения о существовании устойчивого режима в виде стоячей волны в жидкостях с большими значениями числа Прандтля [238] и на необходимость поиска иного объяснения наблюдаемых расхождений.

Детальный сравнительный анализ условий проведения эксперимен-

тов, представленный в данной главе и в более ранних экспериментальных исследованиях, показал наличие только одного значимого различия. В разделе 6.1.1 было отмечено, что для стабилизации жидкого мостика относительно сваливания жидкости через край нижнего цилиндра поверхность последнего была покрыта специальным тефлоновым покрытием, уменьшающим его поверхностную энергию. Жидкость для создания такого покрытия представляет собой суспензию очень мелких фторопластовых частиц, которые после испарения базовой жидкости в ходе термической обработки, формируют однородный слой с поверхностной энергией, порядка, $12 - 14 \text{ эрг/см}^2$. Низкое значение энергии делает энергетически невыгодным смачивание такой поверхности жидкостями, что придает ей как гидрофобные, так и олеофобные свойства. Химическая инертность фторопласта к подавляющему большинству используемых в экспериментальной гидродинамике жидкостей гарантирует отсутствие влияния такого слоя на их свойства. Анализ экспериментальных работ других авторов показал, что для стабилизации жидкого мостика в случае органических жидкостей (силиконовое масло, октадекан, тетратриаконтан) на поверхность нижнего цилиндра всегда наносилось специальное фторсодержащее покрытие, которое изначально представляет собой прозрачный, низковязкий раствор акрилового фторполимера в гидрофторэфирном растворителе. После испарения растворителя на поверхности остается тонкий слой фторполимера. Такие покрытия используются для создания водоотталкивающего слоя при производстве плат в электронной промышленности. К сожалению, на сайтах производителей отсутствует информация о растворимости и взаимодействии данного вещества с органическими жидкостями. Можно предположить, что, обладая крайне низким поверхностным натяжением $11 - 12 \text{ дин/см}$, данное вещество при частичном растворении в жидкости будет образовывать на его поверхности поверхностно-активные пленки, меняя, тем самым, условия для развития термокапиллярной конвекции.

Для проверки гипотезы была проведена дополнительная серия экспериментов, в которой на поверхность нижнего цилиндра были нанесены указанные покрытия. Были использованы жидкости *FC-721*, *FC-725* (3M Novac, США), которые упоминаются в процитированных выше ста-

тнях. После нанесения тонкого слоя цилиндр выдерживался в течение 2 часов при температуре около 100°C , хотя эта процедура не предусмотрена производителем. Затем формировался жидкий мостик, и наблюдалась структура течения в надкритической области. В качестве рабочей жидкости были использованы *n*-декан и силиконовое масло с вязкостью 5 сСт.

Результаты экспериментов показали отсутствие каких-либо отличий с результатами, полученными для случая с тефлоновым покрытием в течение первых, примерно, 5-10 минут. Затем площадь области параметров существования течения в виде бегущей волны существенно сокращается. Такой тип течения наблюдался только вблизи центра области с выбранным волновым числом. При этом значительно увеличивалось время существования переходного режима в виде стоячей волны. Вне центральной части области наблюдались только устойчивые стоячие волны. Спустя, примерно, 20-30 минут при всех значениях параметров на карте (Ma, A) можно было наблюдать только течение в виде стоячей волны.

Во второй серии экспериментов нижний цилиндр с нанесенным слоем не подвергался термической обработке, а выдерживался в течение 30 минут при комнатной температуре, как рекомендовано на сайте производителя. Результаты экспериментов показали возникновение течения в виде устойчивой стоячей волны при всех значениях параметров на карте (Ma, A) с самого начала каждого эксперимента. Вышеперечисленные результаты наблюдений справедливы для жидких мостиков из *n*-декана и силиконового масла.

Результаты экспериментов позволяют достоверно утверждать, что вещество антисмачивающего покрытия, использованное в работах других исследователей [202,206,209,210,222,238,239], частично растворяется в жидкости, значительно влияя на структуру возникающего течения. Именно этот неучтенный авторами данных работ фактор и является причиной наблюдаемого разнообразия полученных ранее результатов. В зависимости от способа создания покрытия, его растворимости и поверхностной активности относительно используемой жидкости наблюдалось либо уменьшение области существования бегущей волны, одновременно с увеличением времени

переходного процесса ее становления, либо установление стоячей волны, как единственного устойчивого типа течения. Применение в представленных в диссертации экспериментах химически инертного и нерастворимого тефлонового покрытия позволило избежать данного осложняющего фактора. С этой точки зрения становятся понятными и результаты экспериментов с расплавами солей. В таких экспериментах, ввиду высоких температур, применяется иной метод стабилизации мостика. Боковая поверхность графитового цилиндра модифицируется в процессе окисления тонкого приповерхностного слоя графита, что позволяет существенно снизить поверхностную энергию, уменьшив, тем самым, смачиваемость расплавом. Дополнительно, высокая окислительная способность таких расплавов делает невозможным формирование пленок поверхностно-активных примесей на поверхности расплава.

Обсудим коротко предполагаемый механизм влияния сурфактанта на структуру колебательного режима течения. Наличие на поверхности раздела молекул ПАВ приводит к появлению дополнительного диссипативного механизма на поверхности жидкости, обусловленного наличием дилатационной вязкости в слое сурфактанта, т.е. потерями энергии на сжатие-растяжение слоя. Этот механизм, например, ответственен за более быстрое затухание поперечных волн на поверхности жидкости, содержащей сурфактант, чем на чистой границе раздела. Периодические искривления поверхности, вызванные распространением волны, приводят к периодическому сжатию-растяжению поверхностной субфазы, на что дополнительно расходуется энергия волны. В случае гидротермической волны влияние сурфактанта должно быть еще более существенным. Развитие термокапиллярного течения на поверхности жидкого мостика перераспределяет молекулы ПАВ, что приводит к появлению встречного касательного напряжения, обусловленного концентрационным эффектом Марангони, ослабляющего основное течение. С другой стороны, распределение поверхностной температуры и скорости, описанные в Разделе 6.2.2, должно приводить к накоплению молекул сурфактанта в области холодных фаз волны, азимутальное движение которых будет дополнительно демпфироваться необходимостью перемещения поверхностной субфазы. Все это должно приводить

к уменьшению амплитуды бегущей волны. Таким образом, после развития стоячей волны в результате первичной неустойчивости наличие сурфактанта не дает существенно увеличиваться амплитуде гидротермических волн обоих направлений, сохраняя, тем самым, условия для устойчивого существования стоячей волны, как суперпозиции двух бегущих волн сопоставимой амплитуды.

На Рис.6.19а представлен вид сверху на структуру течения в виде стоячей волны для случая $m = 3$. В данной серии экспериментов боковая поверхность нижнего удерживающего цилиндра была обработана $FC-725$. Положение на карте (Ma, A) (см. Рис.6.4) соответствует центру области существования АС. Видно, что оно состоит из $2m$ вихрей, ось которых имеет как азимутальную, так и аксиальную составляющие. Между вихрями на поверхности расположены горячие и холодные фазы стоячей волны, которые меняются местами каждые полпериода. Последний факт хорошо виден на временных зависимостях температуры (см. Рис.6.19б, левый столбец), полученных с помощью трех термопар, расположение которых показано на Рис.6.19б (правый столбец). В соответствии с изменениями температурного поля на поверхности, направление движения в вихрях меняется каждые полпериода на противоположное.

Между вихрями имеются тонкие темные области, обедненные частицами. По всей видимости, это связано с наличием застойной зоны в центре жидкого мостика. Как и в случае бегущей волны, течение распространяется вглубь мостика на расстояние, примерно, $2R/3$. В результате в центре формируется неподвижная зона, в пределах которой более тяжелые, по отношению к жидкости, частицы быстро оседают на поверхности нижнего цилиндра, что хорошо заметно на изображении в виде светлого кольца, образованного осевшими частицами и расположенного по внутреннему краю вихрей. В результате, внешние линии тока вихрей оказываются обедненными частицами, а пространство между вихрями более темным на фоне черной поверхности нижнего цилиндра. Поскольку скорость внутри вихрей постоянно меняется как по величине, так и по направлению, то не возникает условий для пространственного перераспределения частиц в таком нестационарном потоке. В результате режим течения в виде стоячей вол-

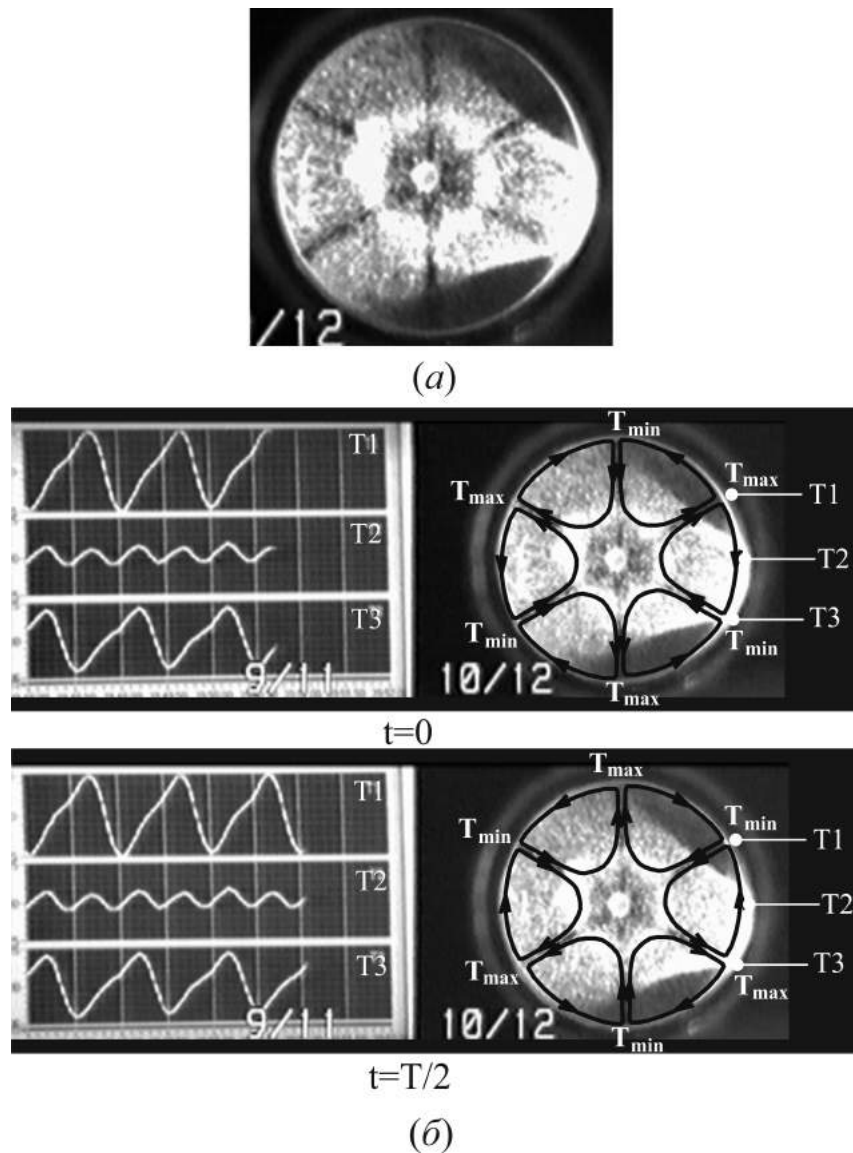


Рис. 6.19. (а) – Структура течения (вид сверху) в режиме стоячей волны. (б) – временная зависимость температуры (правая колонка), измеренной термопарами $T1$, $T2$ и $T3$, расположенными на расстоянии 0.1 мм от свободной поверхности со стороны газовой фазы на высоте $z = L/2$, и структура течения (правая колонка), наблюдаемые в начале и середине периода стоячей волны.

ны не приводит к формированию аккумуляционных структур, описанных выше в данной главе.

Заключение

Итоги выполненного исследования.

1. Впервые экспериментально исследована структура и устойчивость конвективного течения от локализованного источника тепла, расположенного на поверхности цилиндрического слоя, вертикальные и горизонтальные размеры которого много больше размеров тепловой неоднородности и характерного размера течения. Обнаружено, что такая модель полубесконечного слоя обладает наибольшим потенциалом устойчивости по сравнению с другими моделями в цилиндрической геометрии.
2. Экспериментально исследована структура и устойчивость теплового (гравитационного и Марангони) конвективного течения, генерируемого затопленным локализованным источником тепла, в модели полубесконечного слоя жидкости. Задача рассмотрена для двух типов источника: непроницаемый источник с твердыми границами или проницаемый источник, индуцированный излучением. Показано, что при любой глубине погружения в случае непроницаемого источника конвективное течение локализовано в пространстве как в радиальном, так и в аксиальном направлении, тогда как для проницаемого источника характерно развитие конвективного течения во всем объеме жидкости. Обнаружено, что приближение непроницаемого источника к границе раздела приводит к развитию неустойчивости в виде поверхностных волн, цилиндрической или спиральной конфигурации, предсказанных ранее в теоретических исследованиях, но не наблюдавшихся экспериментально. Показано, что в случае проницаемого источника термокапиллярное течение остается устойчивым при любых значениях числа Марангони, достижимых в эксперименте.

3. Экспериментально исследована структура и устойчивость концентрационного (гравитационного и Марангони) конвективного течения от локализованного затопленного источника ПАВ. Обнаружено, что в отличие от теплового источника, где основное течение всегда стационарно, возможны два сценария развития конвективного движения в зависимости от величины концентрационного динамического числа Бонда Bo_{dyn} , показывающего отношение вкладов гравитационной конвекции и конвекции Марангони. В области малых значений данного параметра при любых глубинах погружения источника основное течение имеет колебательный характер, при этом период колебаний определяется Bo_{dyn} . Предложен безразмерный комплекс, позволяющий объединить результаты экспериментов с различными ПАВ в единую зависимость. В области больших значений Bo_{dyn} появляется область существования стационарного основного течения, расширяющаяся с ростом Bo_{dyn} . Показано, что в диапазоне значений $Bo_{dyn} \sim 10^{-2}$ и выше структура конвективного движения в тепловой и концентрационной задачах о затопленном источнике становятся одинаковыми. Учитывая, что зависимость поверхностного натяжения от концентрации более сильная, чем от температуры, источник массы можно рассматривать, как источник тепла аномальной интенсивности.
4. Экспериментально исследована задача о структуре и устойчивости концентрационного течения Марангони от локализованного источника ПАВ, расположенного на поверхности цилиндрического глубокого слоя жидкости, поверхность которого содержит адсорбированный слой сурфактанта. Задача рассмотрена для случая нерастворимого сурфактанта и растворов сурфактантов, существенно различающихся по своим свойствам. Обнаружено, что вне зависимости от типа и свойств сурфактанта основное осесимметричное течение, генерируемое сосредоточенным источником, является абсолютно неустойчивым, в результате чего на границе раздела развивается периодическое в азимутальном направлении многовихревое течение. Предложен фи-

зический механизм возникновения обнаруженной неустойчивости, заключающийся в асимметрии граничного условия для потенциальной и вихревой составляющих скорости конвективного движения жидкости на границе раздела.

5. Экспериментально исследованы процессы формирования равновесного адсорбированного слоя в растворах сурфактантов в неподвижной жидкости и при наличии конвективного течения. Показано, что наличие конвекции как минимум на два порядка ускоряет установление равновесного распределения между объемной и поверхностной фазами.
6. Экспериментально исследована проблема взаимодействия термокапиллярного течения с адсорбированной пленкой нерастворимого сурфактанта в приближении Хеле-Шоу. Показано, что структура конвективного движения полностью определяется величиной параметра упругости E – безразмерного комплекса, показывающего соотношение вкладов концентрационного и теплового механизмов Марангони. Обнаружено, что при $E > 1$ на всей поверхности развивается медленное термокапиллярное течение, обусловленное двумерными диффузионными процессами в адсорбированном слое. При $E < 1$ у края с большей температурой появляется зона свободной поверхности, где развивается интенсивная термокапиллярная конвекция, тогда как аккумуляющийся вблизи холодного края сурфактант формирует застойную зону. Показано, что полученная в экспериментах зависимость положения границы застойной зоны от величины параметра упругости не совпадает с результатами теоретических исследований. Предложено аналитическое описание данной зависимости, хорошо согласующееся с результатами экспериментов.
7. Предложен и реализован метод измерения коэффициента поверхностной диффузии сурфактанта в адсорбированном слое, базирующийся на измерении скорости термокапиллярного течения в застойной зоне. Впервые проведены измерения данного параметра для слоев, находящихся в газовом фазовом состоянии. Показано, что величина коэффи-

циента поверхностной диффузии оказывается на два-четыре порядка выше значений, обычно используемых в теоретических исследованиях.

8. Экспериментально исследована устойчивость плоского горизонтального слоя жидкости со свободной верхней границей при наличии наклонного градиента температуры. Задача рассмотрена в широком диапазоне значений динамического числа Бонда, что позволило изучить эволюцию неустойчивости по мере увеличения вклада термогравитационного механизма в формирование конвективного течения. Показано качественное согласие экспериментальных и теоретических результатов в области малых значений Bo_{dyn} . В области больших значений Bo_{dyn} обнаружен новый тип неустойчивости, при котором неустойчивость вытесняется в приповерхностную часть течения, в то время как возвратная часть течения остается устойчивой. Показано, что при больших Bo_{dyn} данный тип вторичного течения становится доминирующим. Предложен физический механизм формирования обнаруженной неустойчивости.
9. Экспериментально исследовано явление аккумуляции твердых включений тепловой конвекцией Марангони в жидком мостике. Впервые сформулированы необходимые и достаточные условия появления аккумуляционных структур и определены области их существования в пространстве безразмерных параметров. Исследовано влияние размера, формы и относительной плотности твердых включений на скорость формирования аккумуляционных структур. Предложен физический механизм взаимодействия конвективного течения с твердыми включениями, объясняющий специфику формирования и форму аккумуляционных структур.
10. Подготовлены и проведены эксперименты на борту суборбитального спутника с целью изучения явления аккумуляции твердых включений тепловой конвекцией Марангони в жидком мостике в условиях микрогравитации. Показан негравитационный характер изучаемого

явления, что хорошо согласуется с предложенным физическим механизмом эффекта аккумуляции.

11. Проведены экспериментальные исследования влияния поверхностно-активной примеси на структуру термокапиллярного течения и формирование аккумуляционных структур в жидком мостике. Обнаружена смена структуры вторичного течения, что делает невозможным формирование аккумуляционных структур.

Рекомендации и перспективы дальнейшей разработки темы.

Представленные в диссертации результаты исследований убедительно продемонстрировали необходимость учета ряда физических механизмов, которым раньше уделялось недостаточно внимания в рамках традиционных моделей межфазной гидродинамики. Особенно это касается изучения задач, в которых жидкая среда содержит поверхностно-активную примесь. Как показывают результаты диссертационного исследования даже небольшое содержание таких веществ способно кардинально изменить структуру и устойчивость конвективного течения и, следовательно, тепло и массоперенос в системе. Особенную актуальность этот фактор приобретает при рассмотрении задач, связанных с процессами выращивания кристаллов, где поверхностные механизмы играют важную роль в формировании конвективного движения в расплаве. Изменение структуры последнего способно критическим образом повлиять на форму фронта кристаллизации и распределение примеси в растущем монокристалле, а значит и на качество конечного продукта. Влияние механизмов взаимодействия конвективного течения с адсорбированной пленкой ПАВ, исследованных в диссертации, необходимо учитывать при моделировании указанных технологических процессов и интерпретации получаемых в процессе выращивания кристалла результатов.

В плане перспектив дальнейшей разработки темы диссертационного исследования необходимо отметить два наиболее интересных направления. Первое из них связано с изучением динамики поверхностной фазы, сформированной молекулами сурфактанта, в условиях баланса касательных напряжений термокапиллярной и концентрационной природы. В диссертации

ции эта проблема рассмотрена на примере нерастворимого сурфактанта. В частности, обнаружено, что в условиях динамического равновесия на поверхности термокапиллярное движение уравнивает диффузионное размытие градиента в слое, что можно использовать для измерения коэффициента поверхностной диффузии. В случае растворимого сурфактанта в установлении динамического равновесия участвуют также массообменные процессы между объемной и поверхностной фазами. Адсорбция, преобладающая вблизи горячего края, где слой разрежен, и десорбция, уводящая в объем избыток молекул из сжатого слоя вблизи холодного края, а также конвективный перенос за счет термокапиллярного механизма организуют своеобразный «молекулярный конвейер» на границе раздела. В таких условиях установившееся распределение скорости на поверхности будет содержать информацию о величине коэффициентов адсорбции и десорбции. На сегодняшний день хорошо развиты методы измерения соотношения этих коэффициентов, так называемой константы Ленгмюра-Шишковского. Независимые измерения данных величин – непростая экспериментальная задача, требующая применения достаточно сложных и дорогих методик. В этом плане измерения скорости на поверхности и связанного с ней распределения температуры вдоль поверхности раздела могут дать новый, относительно простой метод измерения коэффициентов адсорбции и десорбции.

Другим перспективным направлением исследований является дальнейшее изучение аккумуляции твердых включений в суспензиях при наличии термокапиллярного течения. Предложенный в диссертации физический механизм явления, заключающийся в боковом дрейфе частиц в сдвиговом потоке, должен проявлять себя и в других гидродинамических системах со свободной поверхностью, вдоль которой задан градиент температуры. Данное явление может быть эффективно использовано, например, для отделения твердых продуктов реакции в циклических реакторах проточного типа, где нежелательно применение фильтрующих систем. Участок с тепловой конвекцией Марангони может служить для обогащения части потока твердыми включениями с его последующим отделением.

Список литературы

1. Мизёв А. Экспериментальное исследование термокапиллярной конвекции, индуцированной локальной температурной неоднородностью вблизи поверхности жидкости. 1. Твердотельный источник тепла. // Прикладная механика и техническая физика. — 2004. — Т. 45, № 4. — С. 36–49.
2. Мизёв А. Экспериментальное исследование термокапиллярной конвекции, индуцированной локальной температурной неоднородностью вблизи поверхности жидкости. 2. Источник тепла, индуцированный излучением. // Прикладная механика и техническая физика. — 2004. — Т. 45, № 5. — С. 102–108.
3. Mizev A. Influence of an adsorption layer on the structure and stability of surface tension driven flows // *Physics of Fluids*. — 2005. — Vol. 17, no. 12. — P. 122107.
4. Particle accumulation structures in time-dependent thermocapillary flow in a liquid bridge under microgravity / D. Schwabe, A. Mizev, S. Tanaka, H. Kawamura // *Microgravity-Science and Technology*. — 2006. — Vol. 18, no. 3-4. — P. 117–127.
5. Formation of dynamic particle accumulation structures in oscillatory thermocapillary flow in liquid bridges / D. Schwabe, A. Mizev, M. Udhayasankar, S. Tanaka // *Physics of Fluids*. — 2007. — Vol. 19, no. 7. — P. 072102.
6. Mizev A., Schwabe D. Convective instabilities in liquid layers with free upper surface under the action of an inclined temperature gradient // *Physics of Fluids*. — 2009. — Vol. 21, no. 11. — P. 112102.
7. Schwabe D., Mizev A. Particles of different density in thermocapillary liquid bridges under the action of travelling and standing hydrothermal

- waves // *European Physical Journal: Special Topics*. — 2011. — Vol. 192, no. 1. — P. 13–27.
8. Mizev A., Birikh R. Interaction between buoyant and solutocapillary convections induced by a surface-active source placed under the free surface // *The European Physical Journal Special Topics*. — 2011. — Vol. 192, no. 1. — P. 145–153.
 9. Мизев А. Устойчивость и структура конвективных течений, индуцированных локальной неоднородностью распределения поверхностно-активного вещества вблизи границы раздела // *Вестник Нижегородского университета им. Н.И. Лобачевского*. — 2011. — № 4(5). — С. 2354–2356.
 10. Instability of marangoni flow in the presence of an insoluble surfactant. Experiments / A. Mizev, A. Trofimenko, D. Schwabe, A. Viviani // *The European Physical Journal Special Topics*. — 2013. — Vol. 219, no. 1. — P. 89–98.
 11. Мизев А., Трофименко А. Влияние пленки нерастворимого сурфактанта на устойчивость концентрационного течения Марангони // *Известия Российской академии наук. Механика жидкости и газа*. — 2014. — № 1. — С. 32–44.
 12. Мизёв А., Брацун Д., Шмырова А. Влияние конвекции на формирование адсорбированной плёнки ПАВ при динамическом изменении площади поверхности раствора // *Вычислительная механика сплошных сред*. — 2016. — Т. 9, № 3. — С. 345–357.
 13. On the extent of surface stagnation produced jointly by insoluble surfactant and thermocapillary flow / A. Shmyrov, A. Mizev, V. Demin et al. // *Advances in Colloid and Interface Science*. — 2018. — Vol. 255. — P. 10 – 17.
 14. Мизёв А. Возникновение и устойчивость концентрационного конвективного течения от затопленного источника ПАВ: эксперимент //

- Труды XVI Зимней школы по механике сплошных сред (механика сплошных сред как основа современных технологий). — Пермь : ИМСС УрО РАН, 2009. — С. Электрон. оптич. диск (CD-ROM).
15. Thermal and solutal Marangoni convection: similarities and differences / R. Birikh, K. Kostarev, A. Mizev et al. // 11-th National Congress on Theoretical and Applied Mechanics. — Sofia : Institute of Mechanics, 2009. — P. ID172.
 16. Концентрационная конвекция, инициируемая затопленным источником ПАВ / Р.В. Бирих, Е.С. Мазунина, А.И. Мизев, Р.Н. Рудаков // Конвективные течения. — 2009. — № 4. — С. 63–84.
 17. Mizev A., Birikh R., Denisova M. Development and stability of a convective mass transfer induced by local heterogeneity of surface-active substance distribution near a free liquid surface // Proc. of the XXXVIII Summer School - Conference Advanced Problems in Mechanics. — St. Petersburg : Institute for Problems in Mechanical Engineering, 2010. — P. 72–78.
 18. Мизёв А. Конвективные течения при наличии локальной неоднородности поверхностно-активного вещества вблизи свободной поверхности. Эксперимент // Труды XVII Зимней школы по механике сплошных сред. — Пермь : ИМСС УрО РАН, 2011. — С. Электрон. оптич. диск (CD-ROM).
 19. Брацун Д., Мизёв А., Трофименко А. Динамика формирования адсорбированной плёнки на поверхности многокомпонентных растворов ПАВ // Конвективные течения. — 2011. — № 5. — С. 61–77.
 20. Мизев А., Трофименко А. Устойчивость концентрационно-капиллярного течения Марангони при наличии адсорбированной пленки поверхностно-активного вещества // Конвективные течения. — 2011. — № 5. — С. 39–52.
 21. Mizev A., Trofimenko A. Instability of solutocapillary flow in the presence of insoluble surfactant // Proc. of the XXXIX Summer School - Conference

- Advanced Problems in Mechanics. — St. Petersburg : Institute for Problems in Mechanical Engineering, 2012. — P. 395–402.
22. Мизёв А., Шмыров А. Влияние нерастворимого сурфактанта на развитие термокапиллярной конвекции // Конвективные течения. — 2013. — № 6. — С. 217–230.
 23. Мизев А., Трофименко А. Исследование устойчивости концентрационной конвекции Марангони от сосредоточенного источника на поверхности в присутствии ПАВ // Труды XIX Зимней школы по механике сплошных сред. — Пермь : ИМСС УрО РАН, 2015. — С. Электрон. оптич. диск (CD-ROM).
 24. Мизёв А., Шмыров А. Взаимодействие термокапиллярного течения с поверхностной фазой в ячейке Хеле-Шоу // Конвективные течения. — 2015. — № 7. — С. 37–60.
 25. Мизёв А., Шмырова А. Исследование устойчивости концентрационно-капиллярного течения Марангони от сосредоточенного источника на свободной поверхности жидкости в присутствии ПАВ // Конвективные течения. — 2015. — № 7. — С. 73–92.
 26. Мизёв А., Шмыров А., Шмырова А. О причинах возникновения вихревого течения на межфазной границе, содержащей адсорбированный слой поверхностно-активного вещества // Неравновесные процессы в сплошных средах: материалы междунар. симп.: в 2 т. — Т. 1. — Пермь : Перм. гос. нац. исслед. ун-т, 2017. — С. 92–94.
 27. Birikh R. V. Thermocapillary convection in a horizontal layer of liquid // Journal of Applied Mechanics and Technical Physics. — 1966. — Vol. 7, no. 3. — P. 43–44.
 28. Sen A., Davis S. Steady thermocapillary flows in two-dimensional slots // Journal of Fluid Mechanics. — 1982. — Vol. 121. — P. 163–186.
 29. Smith M., Davis S. Instabilities of dynamic thermocapillary liquid layers. Part 1. Convective instabilities // Journal of Fluid Mechanics. — 1983. — Vol. 132. — P. 119–144.

30. Smith M., Davis S. Instabilities of dynamic thermocapillary liquid layers. Part 2. Surface-wave instabilities // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1983. — Vol. 132. — P. 145–162.
31. Smith M. The nonlinear stability of dynamic thermocapillary liquid layers // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1988. — Vol. 194. — P. 391–415.
32. Sim B., Zebib A., Schwabe D. Oscillatory thermocapillary convection in open cylindrical annuli. Part 2. Simulations // *Journal of Fluid Mechanics*. — 2003. — Vol. 491. — P. 259–274.
33. Three-dimensional numerical simulation of thermocapillary flow of moderate Prandtl number fluid in an annular pool / Y-R. Li, L. Peng, Y. Akiyama, N. Imaishi // *Journal of crystal growth*. — 2003. — Vol. 259, no. 4. — P. 374–387.
34. Thermocapillary convection in a differentially heated annular pool for moderate Prandtl number fluid / Y-R. Li, L. Peng, S-Y. Wu et al. // *International journal of thermal sciences*. — 2004. — Vol. 43, no. 6. — P. 587–593.
35. Convective instability in annular pools / Y-R. Li, L. Peng, W-Y. Shi, N. Imaishi // *FDMP: Fluid Dynamics & Materials Processing*. — 2006. — Vol. 2, no. 3. — P. 153–166.
36. Shi W., Imaishi N. Hydrothermal waves in differentially heated shallow annular pools of silicone oil // *Journal of crystal growth*. — 2006. — Vol. 290, no. 1. — P. 280–291.
37. Schwabe D., Scharmann A. Some evidence for the existence and magnitude of a critical Marangoni number for the onset of oscillatory flow in crystal growth melts // *Journal of Crystal Growth*. — 1979. — Vol. 46, no. 1. — P. 125 – 131.
38. Chun C., Wuest W. Experiments on the transition from the steady to the oscillatory Marangoni-convection of a floating zone under reduced gravity effect // *Acta Astronautica*. — 1979. — Vol. 6, no. 9. — P. 1073 – 1082.

39. Garnier N., Chiffaudel A. Two dimensional hydrothermal waves in an extended cylindrical vessel // *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems*. — 2001. — Vol. 19, no. 1. — P. 87–95.
40. Hydrothermal waves in Marangoni convection in a cylindrical container / A.B. Ezersky, A. Garcimartin, J. Burguete et al. // *Phys. Rev. E*. — 1993. — Vol. 47. — P. 1126–1131.
41. Riley R., Neitzel G. Instability of thermocapillary–buoyancy convection in shallow layers. Part 1. Characterization of steady and oscillatory instabilities // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1998. — Vol. 359. — P. 143–164.
42. Buoyant-thermocapillary instabilities in extended liquid layers subjected to a horizontal temperature gradient / J. Burguete, N. Mukolobwicz, F. Daviaud et al. // *Physics of Fluids*. — 2001. — Vol. 13, no. 10. — P. 2773–2787.
43. Lappa M. *Thermal convection: patterns, evolution and stability*. — John Wiley & Sons, 2009.
44. Garnier N., Normand C. Effects of curvature on hydrothermal waves instability of radial thermocapillary flows // *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IV - Physics*. — 2001. — Vol. 2, no. 8. — P. 1227 – 1233.
45. Instabilities of shallow dynamic thermocapillary liquid layers / D. Schwabe, U. Moeller, J. Schneider, A. Scharmann // *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics*. — 1992. — Vol. 4, no. 11. — P. 2368–2381.
46. Garnier N., Chiffaudel A., Daviaud F. Hydrothermal waves in a disk of fluid // *Dynamics of Spatio-Temporal Cellular Structures*. — Springer, 2006. — P. 147–161.
47. Schwabe D. Standing waves of oscillatory thermocapillary convection in floating zones under microgravity observed in the experiment maus G141 // *Advances in Space Research*. — 2002. — Vol. 29. — P. 651–660.

48. The role of surface-tension-driven flow in the formation of a surface pattern on a Czochralski silicon melt / T. Azami, S. Nakamura, M. Eguchi, T. Hibiya // *Journal of Crystal Growth*. — 2001. — Vol. 233, no. 1. — P. 99 – 107.
49. Thermocapillary-buoyancy flow of silicon melt in a shallow annular pool / Y-R. Li, L. Peng, S-Y. Wu et al. // *Crystal Research and Technology: Journal of Experimental and Industrial Crystallography*. — 2004. — Vol. 39, no. 12. — P. 1055–1062.
50. Three-dimensional oscillatory flow in a thin annular pool of silicon melt / Y-R. Li, N. Imaishi, T. Azami, T. Hibiya // *Journal of Crystal Growth*. — 2004. — Vol. 260, no. 1-2. — P. 28–42.
51. Thermocapillary flow in a thin annular pool of silicon melt / Y-R. Li, N. Imaishi, T. Azami, T. Hibiya // *Crystal materials for nonlinear optical devices and microgravity science / International Society for Optics and Photonics*. — Vol. 4813. — 2002. — P. 12–24.
52. Yamagishi H., Fusegawa I. Experimental observation of a surface pattern on a Czochralski silicon melt // *J. Jpn. Assoc. Crystal Growth*. — 1990. — Vol. 17. — P. 304–311.
53. Schneider J., Schwabe D., Scharmann A. Experiments on surface waves in dynamic thermocapillary liquid layers // *Microgravity- Science and Technology*. — 1996. — Vol. 9, no. 2. — P. 86–94.
54. Bach C., Schwabe D. Surface waves in thermocapillary flow—revisited // *The European Physical Journal Special Topics*. — 2015. — Vol. 224, no. 2. — P. 319–340.
55. Schwabe D., Zebib A., Sim B. Oscillatory thermocapillary convection in open cylindrical annuli. Part 1. Experiments under microgravity // *Journal of Fluid Mechanics*. — 2003. — Vol. 491. — P. 239–258.
56. An experimental study of oscillatory thermocapillary convection in cylindrical containers / Y. Kamotani, J.H. Lee, S. Ostrach, A. Pline //

- Physics of Fluids A: Fluid Dynamics. — 1992. — Vol. 4, no. 5. — P. 955–962.
57. Kamotani Y., Ostrach S., Masud J. Microgravity experiments and analysis of oscillatory thermocapillary flows in cylindrical containers // Journal of Fluid Mechanics. — 2000. — Vol. 410. — P. 211–233.
58. Kamotani Y., Masud J., Pline A. Oscillatory convection due to combined buoyancy and thermocapillarity // Journal of thermophysics and heat transfer. — 1996. — Vol. 10, no. 1. — P. 102–108.
59. Kamotani Y., Ostrach S. Theoretical analysis of thermocapillary flow in cylindrical columns of high Prandtl number fluids // Journal of heat transfer. — 1998. — Vol. 120, no. 3. — P. 758–764.
60. Kamotani Y., Ostrach S., Masud J. Oscillatory thermocapillary flows in open cylindrical containers induced by CO₂ laser heating // International journal of heat and mass transfer. — 1999. — Vol. 42, no. 3. — P. 555–564.
61. Низовцев В. Капиллярная конвекция в жидком слое при лазерном облучении // Инж.-физ. журн. — 1988. — Т. 55, № 1. — С. 85–92.
62. Пшеничников А., Токменина Г. Деформация свободной поверхности жидкости термокапиллярным движением // Изв. АН СССР. Механика жидкости и газа. — 1983. — № 3. — С. 150–153.
63. Зуев А., Пшеничников А. Деформация и разрыв пленки жидкости под действием термокапиллярной конвекции // Прикладная механика и техническая физика. — 1987. — № 3. — С. 90–95.
64. Smith M., Davis S. The instability of sheared liquid layers // Journal of Fluid Mechanics. — 1982. — Vol. 121. — P. 187–206.
65. Dupeyrat M., Nakache E. Direct conversion of chemical energy into mechanical energy at an oil-water interface. // Bioelectrochemistry Bioenergetics. — 1978. — Vol. 5, no. 1. — P. 134–141.

66. Kovalchuk N. M., Vollhardt D. Autooscillations of surface tension in water-alcohol systems // *The Journal of Physical Chemistry B.* — 2000. — Vol. 104, no. 33. — P. 7987–7992.
67. Kovalchuk N., Vollhardt D. Marangoni instability and spontaneous nonlinear oscillations produced at liquid interfaces by surfactant transfer // *Advances in Colloid and Interface Science.* — 2006. — Vol. 120, no. 1. — P. 1 – 31.
68. Kovalchuk N. M., Vollhardt D. Effect of substance properties on the appearance and characteristics of repeated surface tension auto-oscillation driven by Marangoni force // *Phys. Rev. E.* — 2004. — Vol. 69. — P. 016307.
69. Magome N., Yoshikawa K. Nonlinear oscillation and ameba-like motion in an oil-water system // *The Journal of Physical Chemistry.* — 1996. — Vol. 100, no. 49. — P. 19102–19105.
70. The role of coexisting ions in a chemical oscillation induced by ionic surfactant molecules at a water-nitrobenzene interface / H. Yui, Y. Ikezoe, T. Takahashi, T. Sawada // *The Journal of Physical Chemistry B.* — 2003. — Vol. 107, no. 33. — P. 8433–8438.
71. Hydrodynamically induced chemical oscillation at a water-nitrobenzene interface / Y. Ikezoe, S. Ishizaki, T. Takahashi et al. // *Journal of Colloid and Interface Science.* — 2004. — Vol. 275, no. 1. — P. 298 – 304.
72. Linde H., Schwartz P., Wilke H. Dissipative structures and nonlinear kinetics of the Marangoni instability // *Dynamics and Instability of Fluid Interfaces* / Ed. by T. S. Sorensen. — Vol. 105 of *Lecture Notes in Physics*, Berlin Springer Verlag. — 1979. — P. 75–119.
73. Pattern formation and mass transfer under stationary solutal Marangoni instability / K. Schwarzenberger, T. Koellner, H. Linde et al. // *Advances in Colloid and Interface Science.* — 2014. — Vol. 206. — P. 344 – 371.
74. Jehring H., Huyen N., Horn E. Current-oscillations caused by differences in surface tension at the mercury-liquid interface // *Journal of*

- Electroanalytical Chemistry and Interfacial Electrochemistry. — 1978. — Vol. 88, no. 2. — P. 265 – 268.
75. Kostarev K., Zuev A., Viviani A. Oscillatory Marangoni convection around the air bubble in a vertical surfactant stratification // *Comptes Rendus Mécanique*. — 2004. — Vol. 332, no. 1. — P. 1 – 7.
76. Convective self-oscillations near an air-bubble surface in a horizontal rectangular channel / R. V. Birikh, A. L. Zuev, K. G. Kostarev, R. N. Rudakov // *Fluid Dynamics*. — 2006. — Vol. 41, no. 4. — P. 514–520.
77. Viviani A., Kostarev K. G., Zuev A. Experimental study of convective self-oscillations near the lateral surface of a bubble in a plane rectangular channel // *Acta Astronautica*. — 2008. — Vol. 62, no. 6. — P. 431 – 437.
78. Flow development at the surfaces of bubbles and droplets in gradient solutions of a surfase-active liquid / K. A. Bushueva, M. O. Denisova, A. L. Zuev, K. G. Kostarev // *Colloid Journal*. — 2008. — Vol. 70, no. 4. — P. 416–422.
79. Зуев А. Л., Костарев К. Г. Особенности концентрационно-капиллярной конвекции // *Усп. физ. наук*. — 2008. — Т. 178, № 10. — С. 1065–1085.
80. Oscillatory Marangoni convection around bubbles and drops in heterogenous solutions of surfactants / K.G. Kostarev, N.N. Pisarevskaya, A. Viviani, A.L. Zuev // *Microgravity-Science and Technology*. — 2007. — Vol. 19, no. 2. — P. 26–31.
81. Griffin W. C. Classification of surface-active agents by HLB // *Journal of Cosmetic Science*. — 1949. — Vol. 1. — P. 311–326.
82. Davies J., Rideal E. Chapter 4 - adsorption at liquid interfaces // *Interfacial Phenomena (Second Edition)* / Ed. by J.T. Davies, E.K. Rideal. — Academic Press, 1961. — P. 154 – 216.
83. Русанов А. Мицеллообразование в растворах поверхностно-активных веществ. — СПб : Химия, 1992. — 280 с.

84. Абрамзон А. Поверхностные явления и поверхностноактивные вещества: справочник. — СПб : Химия, 1984. — 392 с.
85. Ролдугин В. Физикохимия поверхности: Учебник-монография. - 2-е изд. — Долгопрудный: Интеллект, 2011. — 568 с.
86. Hadamard J. Mouvement permanent lent d'une sphere liquid et visqueuse dans un liquide visqueux // CR Hebd. Seances Acad. Sci. Paris. — 1911. — Vol. 152. — P. 1735–1738.
87. Rybczynski W. Uber die fortschreitende Bewegung einer flussigen Kugel in einem zahren Medium // Bull. Acad. Sci. Cracovie A. — 1911. — Vol. 1. — P. 40–46.
88. Фрумкин А., Левич В. О влиянии поверхностно-активных веществ на движение на границе жидких сред // Журн. физ. химии. — 1947. — Т. 21, № 10. — С. 1183–1204.
89. Krzan M., Malysa K. Profiles of local velocities of bubbles in n-butanol, n-hexanol and n-nonanol solutions // Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects. — 2002. — Vol. 207, no. 1. — P. 279 – 291.
90. Rising of gas bubbles in an aqueous medium in presence of surfactants / G. Loglio, N. Degli Innocenti, U. Tesei et al. // Il Nuovo Cimento C. — 1989. — Vol. 12, no. 3. — P. 289.
91. Takagi S., Ogasawara T., Matsumoto Y. The effects of surfactant on the multiscale structure of bubbly flows // Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. — 2008. — Vol. 366, no. 1873. — P. 2117–2129.
92. Takagi S., Matsumoto Y. Surfactant effects on bubble motion and bubbly flows // Annual Review of Fluid Mechanics. — 2011. — Vol. 43, no. 1. — P. 615–636.
93. Griffith R. The effect of surfactants on the terminal velocity of drops and bubbles // Chemical Engineering Science. — 1962. — Vol. 17, no. 12. — P. 1057 – 1070.

94. Harper J. F. On spherical bubbles rising steadily in dilute surfactant solutions // *The Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics*. — 1974. — Vol. 27, no. 1. — P. 87–100.
95. Linde H., P. F. Experimenteller nachweis einer neuen hydrodynamischen oberflächenstabilität // *Z. phys. Chemie*. — 1971. — Vol. 247, no. 2. — P. 225–232.
96. Merson R. L., Quinn J. A. Stagnation in a fluid interface: Properties of the stagnant film // *AIChE Journal*. — 1965. — Vol. 11, no. 3. — P. 391–395.
97. Warncke A., Gharib M., Roesgen T. Flow measurements near a Reynolds ridge // *J. Fluids Eng.* — 1996. — Vol. 118, no. 3. — P. 621–624.
98. Hirsa A., Lopez J., Miraghaie R. Measurement and computation of hydrodynamic coupling at an air-water interface with an insoluble monolayer // *Journal of Fluid Mechanics*. — 2001. — Vol. 443. — P. 271–292.
99. Simultaneous measurement of free-surface velocity and surfactant concentration via a common laser probe / M.J. Vogel, A.H. Hirsa, J.S. Kelley, G.M. Korenowski // *Review of Scientific Instruments*. — 2001. — Vol. 72, no. 2. — P. 1502–1509.
100. Vogel M., Hirsa A. Concentration measurements downstream of an insoluble monolayer front // *Journal of Fluid Mechanics*. — 2002. — Vol. 472. — P. 283–305.
101. Kenning D. B. R., Cooper M. G. Interfacial circulation due to surface-active agents in steady two-phase flows // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1966. — Vol. 24, no. 2. — P. 293–306.
102. Pearson J. R. A. On convection cells induced by surface tension // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1958. — Vol. 4, no. 5. — P. 489–500.
103. Nield D. A. Surface tension and buoyancy effects in cellular convection // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1964. — Vol. 19, no. 3. — P. 341–352.

104. Berg J., Acrivos A. The effect of surface active agents on convection cells induced by surface tension // *Chemical Engineering Science*. — 1965. — Vol. 20, no. 8. — P. 737 – 745.
105. Nepomnyashchy A., Simanovskii I., Legros J. Interfacial convection in multilayer systems. Springer Monographs in Mathematics. — Springer New York, 2006. — 498 p.
106. Hanumanthu R., Stebe K. Transient and persistent Marangoni-Bénard convection in the presence of surfactants // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. — 2011. — Vol. 391, no. 1. — P. 51 – 61.
107. Gugliotti M., Baptista M., Politi M. Laser-induced Marangoni convection in the presence of surfactant monolayers // *Langmuir*. — 2002. — Vol. 18, no. 25. — P. 9792–9798.
108. Безуглый Б., Чемоданов С. Эффект задержки термокапиллярного отклика слоя прозрачной жидкости при лазерном нагреве поглощающей подложки // *Журнал технической физики*. — 2005. — Т. 75, № 9. — С. 136–138.
109. The threshold origin of solutocapillary Marangoni convection on a bounded free surface / A. Viviani, M. Denisova, K. Kostarev, A. Zuev // *Acta Astronautica*. — 2014. — Vol. 102. — P. 200–206.
110. Бирих Р., Денисова М., Костарев К. Развитие концентрационно-капиллярной конвекции на межфазной поверхности // *Известия РАН. Механика жидкости и газа*. — 2015. — № 3. — С. 56–67.
111. Homsy G. M., Meiburg E. The effect of surface contamination on thermocapillary flow in a two-dimensional slot // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1984. — Vol. 139. — P. 443–459.
112. Carpenter B., Homsy G. M. The effect of surface contamination on thermocapillary flow in a two-dimensional slot. Part 2. Partially contaminated interfaces // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1985. — Vol. 155. — P. 429–439.

113. McBain J., Sierichs W. The solubility of sodium and potassium soaps and the phase diagrams of aqueous potassium soaps // *Journal of the American Oil Chemists' Society*. — 1948. — Vol. 25, no. 6. — P. 221–225.
114. Joos P., Van Uffelen M. Adsorption kinetics with surface dilatation: 1. Desorption of slightly soluble monolayers at constant surface pressure // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1993. — Vol. 155, no. 2. — P. 271 – 282.
115. Van Uffelen M., Joos P. Adsorption kinetics with surface dilatation: 2. The steady state dynamic surface tension by compressing an adsorbed soluble monolayer with a constant dilatation rate // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1993. — Vol. 158, no. 2. — P. 452 – 459.
116. Van Uffelen M., Joos P. Adsorption kinetics with surface dilatation: 3. Adsorption to a surface expanded with a constant dilatation rate // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. — 1994. — Vol. 85, no. 2. — P. 107 – 118.
117. Van Uffelen M., Joos P. Adsorption kinetics with surface dilatation: 4. Peak tensiometry-adsorption to a linearly expanded surface // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. — 1994. — Vol. 85, no. 2. — P. 119 – 125.
118. Joos P., Van Uffelen M. Adsorption kinetics with surface dilatation: 5. transient surface tensions of an adsorbed monolayer during compression at a constant dilatation rate // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. — 1995. — Vol. 100. — P. 245 – 253.
119. Using bulk convection in a microtensiometer to approach kinetic-limited surfactant dynamics at fluid-fluid interfaces / N. Alvarez, D. Vogus, L. Walker, S. Anna // *Journal of colloid and interface science*. — 2012. — Vol. 372, no. 1. — P. 183–191.
120. Wilson S. D. R. A note on laminar radial flow between parallel plates // *Applied Scientific Research*. — 1972. — Vol. 25, no. 1. — P. 349–354.

121. Jackson J. D., Symmons G. R. An investigation of laminar radial flow between two parallel discs // Applied Scientific Research, Section A. — 1966. — Vol. 15, no. 1. — P. 59–75.
122. Nagy P., Neitzel G. Failure of thermocapillary-driven permanent nonwetting droplets // Physics of Fluids. — 2009. — Vol. 21, no. 11. — P. 112106.
123. Experimental and numerical study of anomalous thermocapillary convection in liquid gallium / J. Priede, A. Cramer, A. Bojarevics et al. // Physics of Fluids. — 1999. — Vol. 11, no. 11. — P. 3331–3339.
124. Unsteady interfacial phenomena during inward weld pool flow with an active surface oxide / C. X. Zhao, V. Van Steijn, I. M. Richardson et al. // Science and Technology of Welding and Joining. — 2009. — Vol. 14, no. 2. — P. 132–140.
125. Пшеничников А. Ф., Яценко С. С. Конвективная диффузия от сосредоточенного источника поверхностно-активного вещества // Ученые записки ПГУ. Гидродинамика. — 1974. — № 5. — С. 175–181.
126. Братухин Ю., Маурин Л. Термокапиллярная конвекция в жидкости, заполняющей полупространство // Прикл. матем. и мех. — 1967. — Т. 31. — С. 577–580.
127. Братухин Ю., Маурин Л. Растворение нагретого тела, соприкасающегося со свободной поверхностью жидкости // Инж.-физ. Журнал. — 1968. — Т. 14, № 6. — С. 1033–1037.
128. Братухин Ю., Макаров С. О вторичных термокапиллярных движениях солитонного типа // Изв. РАН, Механика жидкости и газа. — 1992. — № 4. — С. 20–27.
129. Shtern V., Hussain F. Azimuthal instability of divergent flows // Journal of Fluid Mechanics. — 1993. — Vol. 256. — P. 535–560.
130. Taneda S. Visual observations of the flow around a half-submerged oscillating sphere // Journal of Fluid Mechanics. — 1991. — Vol. 227. — P. 193–209.

131. Riley N. The steady streaming induced by a vibrating cylinder // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1975. — Vol. 68, no. 4. — P. 801–812.
132. Amin N., Riley N. Streaming from a sphere due to a pulsating source // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1990. — Vol. 210. — P. 459–473.
133. Tatsuno M., Bearman P. W. A visual study of the flow around an oscillating circular cylinder at low Keulegan–Carpenter numbers and low Stokes numbers // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1990. — Vol. 211. — P. 157–182.
134. Wuenscher M., Loedje A., Riemann H. Crucible-free pulling of germanium crystals // *Journal of Crystal Growth*. — 2011. — Vol. 318, no. 1. — P. 1039 – 1042.
135. Tillberg E., Carlberg T. Semi-confined Bridgman growth of germanium crystals in microgravity // *Journal of Crystal Growth*. — 1990. — Vol. 99, no. 1, Part 2. — P. 1265 – 1272.
136. Weak flows in a floating zone configuration as a source of radial segregation / M. Levenstam, G. Amberg, E. Tillberg, T. Carlberg // *Journal of Crystal Growth*. — 1990. — Vol. 104, no. 3. — P. 641 – 652.
137. Janz G. I.B - DENSITY // *Molten Salts Handbook* / Ed. by George J. Janz. — Academic Press, 1967. — P. 39 – 51.
138. Murr L. *Interfacial phenomena in metals and alloys*. — Addison-Wesley Pub. Co., Advanced Book Program, 1975. — 376 p.
139. Sakata E. K., Berg J. C. Surface diffusion in monolayers // *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*. — 1969. — Vol. 8, no. 3. — P. 570–575.
140. Good P., Schechter R. Surface diffusion in monolayers // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1972. — Vol. 40, no. 1. — P. 99 – 106.
141. Stroeve P., Miller I. Lateral diffusion of cholesterol in monolayers // *Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Biomembranes*. — 1975. — Vol. 401, no. 2. — P. 157 – 167.

142. Wirz J., Neuman R. Measuring surface diffusion in monomolecular films // Journal of Colloid and Interface Science. — 1978. — Vol. 63, no. 3. — P. 583 – 589.
143. Teissie J., Tocanne J., Baudras A. A fluorescence approach of the determination of translational diffusion coefficients of lipids in phospholipid monolayer at the air-water interface // European Journal of Biochemistry. — 1978. — Vol. 83, no. 1. — P. 77–85.
144. Vollhardt D., Zastrow L., Schwartz P. Investigations on surface diffusion in sparingly soluble monolayers at the gas-liquid interface using radiotracer technique // Colloid and Polymer Science. — 1980. — Vol. 258, no. 10. — P. 1176–1182.
145. Monomer-eximer dynamics in spread monolayers. I. Lateral diffusion of pyrene dodecanoic acid at the air-water interface / T. Loughran, M.D. Hatlee, L.K. Patterson, J.J. Kozak // The Journal of Chemical Physics. — 1980. — Vol. 72, no. 11. — P. 5791–5797.
146. Reiner P., Konrad B. Translational diffusion in phospholipid monolayers measured by fluorescence microphotolysis // Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America. — 1980. — Vol. 80, no. 23. — P. 7183–7187.
147. Agrawal M., Neuman R. Surface diffusion in monomolecular films: II. Experiment and theory // Journal of Colloid and Interface Science. — 1988. — Vol. 121, no. 2. — P. 366 – 380.
148. Copper E., Mann J. Kinetic theory model for insoluble monolayer transport properties. Dilute gas case // The Journal of Physical Chemistry. — 1973. — Vol. 77, no. 25. — P. 3024–3033.
149. Bénard H. Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide // Rev. Gen. Sci. Pure Appl. — 1900. — Vol. 11. — P. 1261—1271.
150. Bénard H. Les tourbillons cellulaires dans une nappeliqüide transportant de la chaleur par convection en regime permanent // Ann. Chim. Phys. — 1901. — Vol. 23. — P. 62—144.

151. Rayleigh L. On the convection currents in a horizontal layer of fluid when the higher temperature is on the under side // *Philos. Mag.* — 1916. — Vol. 32. — P. 529—546.
152. Block M. J. Surface tension as the cause of Bénard cells and surface deformation of a liquid film // *Nature.* — 1956. — Vol. 178. — P. 650—651.
153. Schwabe D. Marangoni instabilities in small circular containers under microgravity // *Experiments in Fluids.* — 2006. — Vol. 40, no. 6. — P. 942—950.
154. Palmer H., Berg J. Convective instability in liquid pools heated from below // *Journal of Fluid Mechanics.* — 1971. — Vol. 47, no. 4. — P. 779—787.
155. Echebarria B., Perez-Garcia C. Stability of hexagonal patterns in Bénard-Marangoni convection // *Phys. Rev. E.* — 2001. — Vol. 63. — P. 066307.
156. Wavelength selection in Bénard-Marangoni convection / P. Cerisier, C. Perez-Garcia, C. Jamond, J. Pantaloni // *Phys. Rev. A.* — 1987. — Vol. 35. — P. 1949—1952.
157. Bestehorn M. Square patterns in Bénard-Marangoni convection // *Phys. Rev. Lett.* — 1996. — Vol. 76. — P. 46—49.
158. Eckert K., Bestehorn M., Thess A. Square cells in surface-tension-driven Bénard convection: experiment and theory // *Journal of Fluid Mechanics.* — 1998. — Vol. 356. — P. 155—197.
159. Benz S., Schwabe D. The three-dimensional stationary instability in dynamic thermocapillary shallow cavities // *Experiments in Fluids.* — 2001. — Vol. 31, no. 4. — P. 409—416.
160. Villers D., Platten J. K. Coupled buoyancy and Marangoni convection in acetone: experiments and comparison with numerical simulations // *Journal of Fluid Mechanics.* — 1992. — Vol. 234. — P. 487—510.

161. Shevtsova V. M., Nepomnyashchy A. A., Legros J. C. Thermocapillary-buoyancy convection in a shallow cavity heated from the side // *Phys. Rev. E*. — 2003. — Vol. 67. — P. 066308.
162. Cockayne B., Gates M. P. Growth striations in vertically pulled oxide and fluoride single crystals // *Journal of Materials Science*. — 1967. — Vol. 2, no. 2. — P. 118–123.
163. Miller D. The role of fluid flow phenomena in the Czochralski growth of oxides in materials processing in the reduced gravity of space, edited by G. E. Rindone. — North-Holland, New York, 1982. — 407 p.
164. Nepomnyashchy A., Simanovskii I., Braverman L. Stability of thermocapillary flows with inclined temperature gradient // *Journal of Fluid Mechanics*. — 2001. — Vol. 442. — P. 141–155.
165. Shklyaev O., Nepomnyashchy A. Thermocapillary flows under an inclined temperature gradient // *Journal of Fluid Mechanics*. — 2004. — Vol. 504. — P. 99–132.
166. Ueno I., Kurosawa T., Kawamura H. Thermocapillary convection in thin liquid layer with temperature gradient inclined to free surface // *Proceedings of the 12th International Heat Transfer Conference, Grenoble, France, 18–23 August 2002*. — Elsevier, Amsterdam, 2002. — P. 129–133.
167. Kawamura H., Tagaya E., Hoshino Y. A consideration on the relation between the oscillatory thermocapillary flow in a liquid bridge and the hydrothermal wave in a thin liquid layer // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. — 2007. — Vol. 50, no. 7. — P. 1263 – 1268.
168. Koschmieder E., Prahl S. Surface-tension-driven Bénard convection in small containers // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1990. — Vol. 215. — P. 571–583.
169. Koschmieder E. Bénard cells and Taylor vortices. — Cambridge University Press, 1993. — 337 p.

170. Onset of surface-tension-driven Bénard convection / M.F. Schatz, S.J. Van Hook, W.D. McCormick et al. // Physical review letters. — 1995. — Vol. 75, no. 10. — P. 1938.
171. Schatz M., Neitzel G. Experiments on thermocapillary instabilities // Annual review of fluid mechanics. — 2001. — Vol. 33, no. 1. — P. 93–127.
172. Koschmieder E., Switzer D. The wavenumbers of supercritical surface-tension-driven Bénard convection // Journal of Fluid Mechanics. — 1992. — Vol. 240. — P. 533–548.
173. Schwabe D., Metzger J. Coupling and separation of buoyant and thermocapillary convection // Journal of Crystal Growth. — 1989. — Vol. 97, no. 1. — P. 23–33.
174. Schwabe D. Holographic interferometry and flow visualization by tracers applied to buoyant-thermocapillary convection in an open rectangular gap // Microgravity sci. technol. — 1996. — Vol. 3. — P. 201–207.
175. Eyer A., Leiste H., Nitsche R. Floating zone growth of silicon under microgravity in a sounding rocket // Journal of Crystal Growth. — 1985. — Vol. 71, no. 1. — P. 173 – 182.
176. Linear-stability theory of thermocapillary convection in a model of the float-zone crystal-growth process / G. P. Neitzel, K. T. Chang, D. F. Jankowski, H. D. Mittelman // Physics of fluids. A, Fluid dynamics. — 1992. — Vol. 5, no. 1. — P. 108–114.
177. Kuhlmann H. C., Rath H. J. Hydrodynamic instabilities in cylindrical thermocapillary liquid bridges // Journal of Fluid Mechanics. — 1993. — Vol. 247. — P. 247–274.
178. Energy analysis of some flow instabilities in liquid bridges / H.C. Kuhlmann, M. Wanschura, V. Shevtsova, H.J. Rath // Advances in Space Research. — 1995. — Vol. 16. — P. 15 – 22.
179. Convective instability mechanisms in thermocapillary liquid bridges / M. Wanschura, V.M. Shevtsova, H.C. Kuhlmann, H.J. Rath // Physics of Fluids. — 1995. — Vol. 7, no. 5. — P. 912–925.

180. Chen G., Lizée A., Roux B. Bifurcation analysis of the thermocapillary convection in cylindrical liquid bridges // *Journal of Crystal Growth*. — 1997. — Vol. 180, no. 3. — P. 638–647.
181. Chen Q., Hu W. Instability from steady and axisymmetric to steady and asymmetric floating half zone convection in a fat liquid bridge of larger Prandtl number // *Chinese Physics Letters*. — 1999. — Vol. 16, no. 11. — P. 822.
182. Chen Q., Hu W. Influence of liquid bridge volume on instability of floating half zone convection // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. — 1998. — Vol. 41, no. 6. — P. 825 – 837.
183. Camel D., Tison P., Carlberg T. Floating zone crystal growth of germanium // in *Proceedings of the Norderney Symposium on Scientific Results of the German Spacelab Mission D2*. — 1995. — P. 494–501.
184. Matsumoto Y., Uda T., Takagi S. The effect of surfactant on rising bubbles // *IUTAM Symposium on Computational Approaches to Multiphase Flow* / Ed. by S. Balachandar, A. Prosperetti. — Dordrecht : Springer Netherlands, 2006. — P. 311–321.
185. Kamotani Y., Matsumoto S., Yoda S. Recent developments in oscillatory Marangoni convection // *Fluid Dynamics and Materials Processing*. — 2007. — Vol. 3, no. 2. — P. 147–160.
186. Rupp R., Moeller G., Neumann G. Three-dimensional time dependent modelling of the Marangoni convection in zone melting configurations for GaAs // *Journal of Crystal Growth*. — 1989. — Vol. 97, no. 1. — P. 34 – 41.
187. Levenstam M., Amberg G. Hydrodynamical instabilities of thermocapillary flow in a half-zone // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1995. — Vol. 297. — P. 357–372.
188. Three dimensional numerical simulation of oscillatory Marangoni flow in half-zone of low Pr fluids / N. Imaishi, S. Yasuhiro, T. Sato,

- S. Yoda // Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering. — 1999. — Vol. 3792. — P. 344–352.
189. Numerical simulation of oscillatory Marangoni flow in half-zone liquid bridge of low Prandtl number fluid / N. Imaishi, S. Yasuhiro, Y. Akiyama, S. Yoda // Journal of Crystal Growth. — 2001. — Vol. 230, no. 1-2. — P. 164–171. — Cited By :51.
190. Leypoldt J., Kuhlmann H., Rath H. Three-dimensional numerical simulation of thermocapillary flows in cylindrical liquid bridges // Journal of Fluid Mechanics. — 2000. — Vol. 414. — P. 285–314.
191. Bazzi H., Nguyen C., Galanis N. Numerical study of the unstable thermocapillary flow in a silicon float zone under μ -g condition // International Journal of Thermal Sciences. — 2001. — Vol. 40, no. 8. — P. 702 – 716.
192. Nakamura S., Kakimoto K., Hibiya T. Convection visualization and temperature fluctuation measurement in a molten silicon column // Materials and Fluids Under low Gravity / Ed. by Lorenz Ratke, Hannes Walter, Berndt Feuerbacher. — Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1996. — P. 343–349.
193. Temperature fluctuations of the Marangoni flow in a liquid bridge of molten silicon under microgravity on board the TR-IA-4 rocket / S. Nakamura, T. Hibiya, K. Kakimoto et al. // Journal of Crystal Growth. — 1998. — Vol. 186, no. 1-2. — P. 85–94.
194. Interfacial phenomena of molten silicon: Marangoni flow and surface tension / T. Hibiya, S. Nakamura, K. Mukai et al. // Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. — 1998. — Vol. 356, no. 1739. — P. 899–909.
195. Hibiya T., Nakamura S. Fluid flow in silicon melt with free surface // Advances in Space Research. — 1999. — Vol. 24, no. 10. — P. 1225–1230.
196. Energy stability of thermocapillary convection in a model of the float-zone crystal-growth process / Y. Shen, G. P. Neitzel, D. F. Jankowski,

- H. D. Mittelman // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1990. — Vol. 217. — P. 639–660.
197. Energy stability of thermocapillary convection in a model of the float-zone crystal-growth process. II: Nonaxisymmetric disturbances / G. P. Neitzel, C. C. Law, D. F. Jankowski, H. D. Mittelman // *Physics of fluids. A, Fluid dynamics*. — 1991. — Vol. 3, no. 12. — P. 2841–2846.
198. Kuhlmann H., Rath H. On the interpretation of phase measurements of oscillatory thermocapillary convection in liquid bridges // *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics*. — 1993. — Vol. 5, no. 9. — P. 2117–2120.
199. Schwabe D., Preisser F., Scharmann A. Verification of the oscillatory state of thermocapillary convection in a floating zone under low gravity // *Acta Astronautica*. — 1982. — Vol. 9, no. 4. — P. 265 – 273.
200. Schwabe D., Scharmann A. Microgravity experiments on the transition from laminar to oscillatory thermocapillary convection in floating zones // *Advances in Space Research*. — 1984. — Vol. 4, no. 5. — P. 43 – 47.
201. Monti R. On the onset of the oscillatory regimes in Marangoni flows // *Acta Astronautica*. — 1987. — Vol. 15, no. 8. — P. 557 – 560.
202. Scientific and technological aspects of a sounding rocket experiment on oscillatory Marangoni flow / R. Monti, R. Savino, M. Lappa, R. Fortezza // *Space Forum*. — 1998. — Vol. 2. — P. 293–318.
203. Schwabe D. Hydrothermal waves in a liquid bridge with aspect ratio near the Rayleigh-limit under microgravity // *Physics of Fluids*. — 2005. — Vol. 17, no. 11. — P. 112104.
204. Schwabe D. Hydrothermal waves under microgravity in a differentially heated long liquid bridge with aspect ratio near the Rayleigh-limit // *17th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research* / Ed. by B. Warmbein. — Vol. 590 of ESA Special Publication. — 2005. — P. 557–564.

205. Schwabe D. Hydrodynamic instabilities under microgravity in a differentially heated long liquid bridge with aspect ratio near the Rayleigh-limit: Experimental results // *Advances in Space Research.* — 2005. — Vol. 36. — P. 36–42.
206. Flow structure and dynamic particle accumulation in thermocapillary convection in a liquid bridge / S. Tanaka, H. Kawamura, I. Ueno, D. Schwabe // *Physics of Fluids.* — 2006. — Vol. 18, no. 6. — P. 067103.
207. Schwabe D., Hintz P., Frank S. New features of thermocapillary convection in floating zones revealed by tracer particle accumulation structures (PAS) // *Microgravity Science and Technology.* — 1996. — Vol. 9. — P. 163–168.
208. Schwabe D. Particle accumulation structures (PAS) in thermocapillary flow in floating zones // *Utilisation of the International Space station 2* / Ed. by A. Wilson. — Vol. 433 of ESA Special Publication. — 1999. — P. 233.
209. Preisser F., Schwabe D., Scharmann A. Steady and oscillatory thermocapillary convection in liquid columns with free cylindrical surface // *Journal of Fluid Mechanics.* — 1983. — Vol. 126. — P. 545–567.
210. Velten R., Schwabe D., Scharmann A. The periodic instability of thermocapillary convection in cylindrical liquid bridges // *Physics of Fluids.* — 1991. — Vol. 3. — P. 267–279.
211. Bennacer R., Mohamad A. A., Leonardi E. The effect of heat flux distribution on thermocapillary convection in a side-heated liquid bridge // *Numerical Heat Transfer, Part A: Applications.* — 2002. — Vol. 41, no. 6-7. — P. 657–671.
212. Sim B., Zebib A. Thermocapillary convection in cylindrical liquid bridges and annuli // *Comptes Rendus Mécanique.* — 2004. — Vol. 332, no. 5. — P. 473 – 486.
213. Free surface heat loss effect on oscillatory thermocapillary flow in liquid bridges of high Prandtl number fluids / Y. Kamotani, L. Wang, S. Hatta

- et al. // International Journal of Heat and Mass Transfer. — 2003. — Vol. 46, no. 17. — P. 3211 – 3220.
214. Shevtsova V., Myaldun A., Legros J. C. Heat transfer from interface in non-cylindrical liquid bridge // International Astronautical Federation - 56th International Astronautical Congress 2005. — Vol. 1. — 2005. — P. 421–428.
215. Subcritical and oscillatory dynamic surface deformations in non-cylindrical liquid bridges / V. Shevtsova, A. Mialdun, C. Ferrera et al. // Fluid Dynamics and Materials Processing. — 2008. — Vol. 4, no. 1. — P. 43–54.
216. Selver R. Experiments on the transition from the steady to the oscillatory Marangoni convection of a floating-zone under various cold wall temperatures and various ambient air temperature effects // Microgravity Science and Technology. — 2005. — Vol. 17, no. 4. — P. 25–35.
217. Effect of ambient fluid flow upon onset of oscillatory thermocapillary convection in half-zone liquid bridge / M. Irikura, Y. Arakawa, I. Ueno, H. Kawamura // Microgravity Science and Technology. — 2005. — Vol. 16, no. 1. — P. 176–180.
218. Kousaka Y., Kawamura H. Numerical study on the effect of heat loss upon the critical Marangoni number in a half-zone liquid bridge // Microgravity Science and Technology. — 2006. — Vol. 18, no. 3. — P. 141.
219. Mialdun A., Shevtsova V. Influence of interfacial heat exchange on the flow organization in liquid bridge // Microgravity Science and Technology. — 2006. — Vol. 18, no. 3-4. — P. 146–149.
220. Melnikov D. E., Shevtsova V. M. Thermocapillary convection in a liquid bridge subjected to interfacial cooling // Microgravity Science and Technology. — 2006. — Vol. 18, no. 3-4. — P. 128–131.
221. Tiwari S., Nishino K. Numerical study to investigate the effect of partition block and ambient air temperature on interfacial heat transfer in liquid

- bridges of high Prandtl number fluid // *Journal of Crystal Growth*. — 2007. — Vol. 300, no. 2. — P. 486 – 496.
222. Frank S., Schwabe D. Temporal and spatial elements of thermocapillary convection in floating zones // *Experiments in Fluids*. — 1997. — Vol. 23, no. 3. — P. 234–251.
223. M. L., R. S., R. M. Influence of buoyancy forces on Marangoni flow instabilities in liquid bridges // *International Journal of Numerical Methods for Heat & Fluid Flow*. — 2000. — Vol. 10, no. 7. — P. 721–749.
224. Einstein A. A new determination of the molecular dimensions // *Ann. Physik*. — 1906. — Vol. 19, no. 2. — P. 289–306.
225. Krieger I. Rheology of monodisperse latices // *Advances in Colloid and Interface Science*. — 1972. — Vol. 3, no. 2. — P. 111 – 136.
226. Leighton D., Acrivos A. The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1987. — Vol. 181. — P. 415–439.
227. Experimental observations of particle migration in concentrated suspensions: Couette flow / J. R. Abbott, N. Tetlow, A. L. Graham et al. // *Journal of Rheology*. — 1991. — Vol. 35, no. 5. — P. 773–795.
228. Rubinow S., Keller J. The transverse force on a spinning sphere moving in a viscous fluid // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1961. — Vol. 11, no. 3. — P. 447–459.
229. Saffman P. G. The lift on a small sphere in a slow shear flow // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1965. — Vol. 22, no. 2. — P. 385–400.
230. Ho B. P., Leal L. G. Inertial migration of rigid spheres in two-dimensional unidirectional flows // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1974. — Vol. 65, no. 2. — P. 365–400.
231. Vasseur P., Cox R. G. The lateral migration of a spherical particle in two-dimensional shear flows // *Journal of Fluid Mechanics*. — 1976. — Vol. 78, no. 2. — P. 385–413.

232. Schonberg J., Hinch E. Inertial migration of a sphere in Poiseuille flow // Journal of Fluid Mechanics. — 1989. — Vol. 203. — P. 517–524.
233. Hogg A. The inertial migration of non-neutrally buoyant spherical particles in two-dimensional shear flows // Journal of Fluid Mechanics. — 1994. — Vol. 272. — P. 285–318.
234. Feng J., Hu H. H., Joseph D. D. Direct simulation of initial value problems for the motion of solid bodies in a Newtonian fluid. Part 1. Sedimentation // Journal of Fluid Mechanics. — 1994. — Vol. 261. — P. 95–134.
235. Segre G., Silberberg A. Behaviour of macroscopic rigid spheres in Poiseuille flow. Part 2. Experimental results and interpretation // Journal of Fluid Mechanics. — 1962. — Vol. 14, no. 1. — P. 136–157.
236. Savino R., Monti R. Oscillatory Marangoni convection in cylindrical liquid bridges // Physics of Fluids. — 1996. — Vol. 8, no. 11. — P. 2906–2922.
237. Lappa M., Savino R., Monti R. Three-dimensional numerical simulation of Marangoni instabilities in liquid bridges: influence of geometrical aspect ratio // International Journal for Numerical Methods in Fluids. — 2001. — Vol. 36, no. 1. — P. 53–90.
238. Instability of thermocapillary convection in liquid bridges / L. Carotenuto, D. Castagnolo, C. Albanese, R. Monti // Physics of Fluids. — 1998. — Vol. 10, no. 3. — P. 555–565.
239. Ueno I., Tanaka S., Kawamura H. Oscillatory and chaotic thermocapillary convection in a half-zone liquid bridge // Physics of Fluids. — 2003. — Vol. 15, no. 2. — P. 408–416.