

WANG Yanqiu, SUN Zhibin, LU Xiaoxiao, ZHENG Fu. Local Temperature Gradient Laser Pulse Triggered Nucleation Experimental Technology under Electrostatic Levitation (in Chinese). *Chinese Journal of Space Science*, 2025, 45(6): 1518–1531. CSTR:32142.14.cjss.2024-0095. DOI:10.11728/cjss2025.06.2024-0095

静电悬浮激光脉冲局部温度梯度 触发形核实验技术*

王艳秋^{1,2} 孙志斌^{1,2} 陆潇晓^{3,4} 郑福¹

1(中国科学院国家空间科学中心 北京 100190)

2(中国科学院大学 北京 101499)

3(国网电力科学研究院有限公司(南瑞集团有限公司) 南京 211106)

4(国电南瑞科技股份有限公司 南京 211106)

摘要 通过激光脉冲在样品表面局部区域形成温度梯度,引起实验样品内部结构起伏和能量起伏概率加大,程度加深,使晶体从熔融的液相亚稳态相变为固相,实现静电悬浮下高质量可控深过冷激光脉冲触发形核。通过有限元模拟仿真方法研究不同加热激光束斑直径,功率为 9 W,功率密度为 $2.86 \times 10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 和 $1.146 \times 10^7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 的激光对温度梯度场的影响,得到不同激光束斑直径下熔融样品局部温度梯度场分布结果。采用直径为 2 mm 铅材料样品,研究在较小激光束斑直径下,不同的激光脉冲宽度与过冷度熔融材料样品触发形核时间尺度变化。基于经典形核理论,通过 16 组不同过冷度,每组 20 次自发形核的数据统计分析,得到铅材料样品在不同过冷度下从母相熔体的亚稳态向固相移动所需时间的变化关系。在此基础上,开展激光脉冲束斑直径为 0.2 mm 的波长为 936 nm,样品为铅材料激光脉冲触发形核实验研究。实验结果表明,铅材料在过冷度为 $195 \text{ K} \pm 3 \text{ K}$,样品形核凝固过程中所需的时间比自发形核所需时间降低 3/4,高质量可控地使熔融样品在不同过冷度下触发形核。

关键词 静电悬浮, 激光脉冲, 局部温度梯度, 触发形核

中图分类号 V524, TP273.2

Local Temperature Gradient Laser Pulse Triggered Nucleation Experimental Technology under Electrostatic Levitation

WANG Yanqiu^{1,2} SUN Zhibin^{1,2} LU Xiaoxiao^{3,4} ZHENG Fu¹

1(National Space Science Center, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190)

2(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 101499)

3(State Grid Electric Power Research Institute (NARI Group Corporation), Nanjing 211106)

* 国家重点研发计划项目(2023YFC2604900)和中国科学院科研仪器设备研制项目(YJKYYQ20190008)共同资助

2024-07-30 收到原稿, 2025-07-06 收到修定稿

©The Author(s) 2025. This is an open access article under the CC-BY 4.0 License
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>)

4(NARI Technology Co., Ltd., Nanjing 211106)

Abstract The containerless and solidification method of electrostatically suspended deep subcooled samples is of great significance for materials science research and materials preparation, and this paper proposes to realize the experimental study of triggered nucleation and solidification and measurement of materials under deep subcooling based on the local temperature gradient field of the laser pulse. By triggering the laser pulse to generate a local temperature, a temperature gradient is formed around the sample, and the temperature gradient triggers convection to increase the probability of structural and energy undulation inside the experimental sample and deepen the degree, so that the crystals change from a molten liquid phase to a solid phase, realizing high-quality and controllable deep-subcooling laser pulse-triggered nucleation under electrostatic levitation. By means of finite element simulation methods, the effect of laser heating with different spot diameters and a power of 9 W, a power density of $2.86 \times 10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ and $1.146 \times 10^7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ on the temperature gradient field was investigated. The distribution results of the local temperature gradient field in the molten sample under different laser spot diameters were obtained. A zirconium sample with a diameter of 2 mm was used in the experiment to study the time scale of triggered nucleation of molten samples with different laser pulse widths and subcooling degrees under smaller laser beam spot diameters. Based on the classical nucleation theory, the time required for the zirconium samples to move from the substable state of the mother phase melt to the solid phase under different supercooling degrees was obtained by statistically analyzing the data from 16 groups of 20 spontaneous nucleations at different supercooling degrees. On this basis, the experimental study of laser pulse triggered nucleation was carried out at a wavelength of 936 nm with a laser pulse spot diameter of 0.2 mm and a sample of zirconium material. The experimental results show that the time required for nucleation and solidification of zirconium material at a low subcooling of $195 \text{ K} \pm 3 \text{ K}$ is 3/4 times lower than that required for spontaneous nucleation, and that high quality and controllable nucleation can be triggered for molten samples at different subcooling levels.

Key words Electrostatic levitation, Laser pulse, Local temperature gradient, Triggered nucleation

0 引言

静电悬浮装置是一种测量材料热物性、研究无容器凝固机理和探索新型材料的无容器实验装置^[1,2]。静电悬浮采用激光加热技术对样品进行非接触式加热处理,无容器的方式有效避免了容器壁在样品表面引起的化学反应和异质形核,静电悬浮可以获得较大过冷度范围的大尺寸液滴^[3,4]。与声悬浮、气悬浮、电磁悬浮^[5-7]等其他无容器方法相比,静电悬浮技术可以实现更稳定的样品控制,为材料研究提供了无污染、扰动小、无强制对流的高真空环境,已成为材料制备与研究的一种新途径^[8,9]。

静电悬浮技术已经发展近 30 年,美国马歇尔太空飞行中心、日本宇航局、德国航空航天中心、韩国标准科学研究院和俄罗斯科学院高温联合研究所都先后研制了静电悬浮无容器装置,对多种材料的热物

理性质开展了测量研究^[10-14]。中国的西北工业大学于 2010 年建立了单轴反馈静电悬浮控制系统^[15],实现多种样品悬浮。中国科学院国家空间科学中心的团队^[16]于 2015 年建成静电悬浮实验装置,测量了锆材料相关热物性。2019 年中国科学院空间应用工程与技术中心研制完成以 CCD (Charge-Coupled Device) 作为位置传感器的静电悬浮实验装置^[17],对多种金属及其合金进行了热物性与过冷熔体触发形核研究工作。在中国载人航天计划的支持下,中国科学院硅酸盐研究所和中国科学院空间应用工程与技术中心在中国空间站核心舱部署了无容器科学实验柜,用于开展微重力条件下高温难熔材料无容器凝固研究及材料热物性分析^[18]。

由于静电悬浮装置的无容器非接触式实验方式对样品引入的扰动较小,样品通常在较大过冷度下才发生形核凝固行为。为获得不同过冷度下材料的热物

性质特征, 国内外已开展大量研究实验. Rathz 等^[19]在静电悬浮条件下, 使用钨探针通过步进电机对熔融 Ni60 Nb40 合金进行触发, 得到了过冷度为 50, 98, 105, 154 K 的样品. Herlach 等^[20]使用 Fe95 Mo5 合金探针针对过冷态下的铁镍合金进行触发, 并结合样品温度值证明了样品内生成了亚稳态面心立方结构凝固产物. Aoyama 等^[21]使用飞针触发和硅粉尘微粒触发的方法, 在静电悬浮状态下获得了过冷度范围 43~317 K 的高纯 Si 样品, 观察不同过冷度下枝晶的生长机制转变过程. Yang^[22]通过钨针、弹簧和直线导入器搭建了触发形核装置, 结合高速摄像机测量多种高温难熔材料 (例如 Zr, Nb, W, Ta, Mo) 不同过冷度条件下枝晶生长速度.

目前, 在外静电悬浮设备中, 为获得不同过冷度下的实验样品, 对于过冷样品的主动触发方式大多基于探针的异质形核触发方法. 虽然通过引入的异质探针触发具有较高的形核成功率, 但是由于悬浮样品本身的不稳定性叠加运动的探针引入的动能, 极易扰动样品悬浮控制的稳定性, 使样品掉落或者样品与探针粘连, 这对实验测量会造成极大困难. 此外, 探针的接触式触发在与样品接触后会导致样品传热方式由单纯的激光加热热辐射传热转变为热传导传热, 所测样品的温度变化情况难以反映出真实特性.

本文针对异质形核过程中, 获得最大过冷度范围内不同过冷度下的形核样品存在控制难点的问题, 提出一种基于激光脉冲局部温度梯度场同质快速形核方法. 激光的高亮度光斑经透镜聚焦后可使材料温度上升到数千度^[23], 在材料制造领域具有重要的应用价值, 例如激光加热熔融材料样品与制备的材料表面的光洁度、形变、起球缺陷等现象会受激光功率、扫描速度和光束光斑大小的影响^[24]. 本文采用较小的激光束斑直径, 使用不同宽度的激光脉冲对样品进行局部加热, 增大熔融材料样品局部温度场分布梯度, 使液态样品发生结构和能量起伏概率增加, 从而触发形核, 高质量可控地获得不同过冷度对应的材料凝固样品. 通过经典形核动力学理论和激光脉冲触发行核原理分析, 通过热仿真分析实验研究了不同加热激光束斑直径, 功率为 9 W, 功率密度为 $2.86 \times 10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 和 $1.146 \times 10^7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 的激光对样品表面产生的局部温度梯度场分布. 基于热仿真分析结果, 通过静电悬浮实验开展实验验证. 实验结果

表明, 激光脉冲使熔融材料样品产生局部温度梯度, 通过非接触式激光脉冲触发手段高质量控制样品形核过冷度, 从而获得材料样品在过冷 195~306 K 范围的实验结果. 本方法能够有效控制材料样品在最大过冷度范围内的不同过冷度下的形核凝固. 基于本研究的地面实验结果, 可为空间无容器材料实验高质量可控激光脉冲触发行核研究提供基础.

1 实验装置与工作原理

1.1 实验装置整体组成

为实现样品的稳定悬浮和非接触式加热控制, 静电悬浮无容器实验装置集成精密的光学、机械、电子学控制、热辐射等测量控制系统. 实验容器为真空腔体, 腔体内部有悬浮样品的高压电极, 腔室外部载物台上放置用于测量和控制的外围抽真空组件及各类传感器, 整体装置如图 1 所示. 静电悬浮实验装置的测量控制单元分为三部分: 位置控制模块、温度控制模块、图像采集模块. 位置控制模块实时采集实验样品的位置信息, 并通过控制高压电源的输出电压控制实验样品的位置, 使样品稳定悬浮于上下电极之间. 温度控制模块用于控制加热激光器的输出激光功率, 并采集实验样品的温度, 使实验样品的温度值达到设置值. 图像采集模块通过采集实验样品的表面图像, 观察样品的悬浮情况和表面形貌瞬态信息.

静电悬浮无容器装置控制单元包括位置控制模块和温度控制模块两部分, 位置控制模块由位置测量

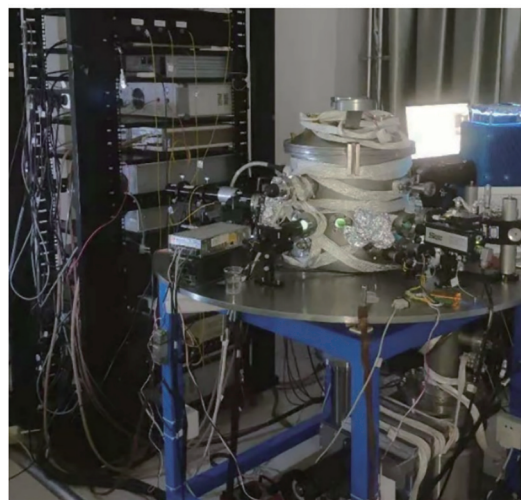


图 1 静电悬浮实验装置

Fig. 1 Electrostatic levitation experimental device

准直激光器、位置敏感传感器 PSD (Position Sensitive Detector)、外部高压电源、高压电极、紫外补光灯、偏置电源、位置控制器及上位机控制软件组成, 样品位置控制模块原理图如图 2(a) 所示. 高压上下电极安装于真空腔室的中心轴线位置处, 上下高压电极为圆柱形, 上高压电极直径为 10 mm, 下高压电极直径为 25 mm, 上下高压电极间距 8~10 mm, 电极间距可根据实验样品大小进行调节, 高压电源与上下高压电极通过专用的高压传输电缆连接. 使用 He-Ne 位置准直激光器作为垂直平面位置的测量光源, 通过扩束准直透镜获得直径 20 mm 的平行光束, 覆盖上下高压电极之间样品所处的位置区域. 悬浮样品遮挡的平行光阴影暗场光斑被投射到 PSD 位置传感器上, PSD 位置传感器将样品的位置信息转换为相应的电压信号, 传输至位置控制模块. 位置控制模块通过比较样品实际位置与给定目标位置的偏差, 控制高压电源的电压输出值, 从而控制样品受到的电场力, 使样品稳定地悬浮于目标位置. 在 600~900℃ 温度范围内, 悬浮样品由于光电子逸出易发生电荷丢失, 样品受力发生显著变化, 为维持样品表面电荷量, 采用基于光电效应的紫外照射方法, 激发样品表面的电子脱离, 使样品增加电荷量^[25]. 偏置电压源用于增大上下电极间的电场强度, 使样品在起跳阶段更容易悬浮.

静电悬浮无容器装置的温度控制系统由双波长红外测温仪、温度控制器、上位机、加热激光器和脉冲触发激光器构成, 如图 2(b) 所示. 双波长红外测温仪、加热激光器和脉冲触发激光器安装于真空腔外围

的水平实验台上, 通过石英玻璃窗口对真空腔内实验样品的温度进行采集与控制. 温度控制器通过数字串行通信接口与高低温段双波长测温仪 (Sensortherm H322, 波长为 1.4 μm 和 1.64 μm) 通信, 实时读取样品温度数据, 通过 PID (Proportional Integral Derivative) 控制算法调节激光器输出功率, 使样品温度维持在设定温度值附近. 三台波长为 915 nm 的加热激光器互成 120° 对样品进行加热, 加热输出激光通过激光聚焦镜集中照射至样品的中心处. 激光脉冲触发激光器用于在样品熔融后开展激光脉冲触发实验.

静电悬浮无容器装置的图像采集系统由高分辨率工业相机 CCD 和超高速相机组成. 高分辨率 CCD 图像采集系统由 LED (Light Emitting Diode)、滤波片、高分辨率 CCD 和上位机存储设备构成, 其原理图如图 3 所示. 加热激光器对样品进行非接触式加热过程中, 容易产生的较强的光辐射, 这些光辐射会影响样品图像边缘的清晰程度^[26], 从而影响图像边缘提取的准确度. 因此需要使用波长为 450 nm 的 LED 作为背景光源照射材料样品, 再通过相应波长的带通滤光片将光辐射滤光, 使用带聚焦镜头的高分辨率 CCD 拍摄样品图像, 获得清晰的样品轮廓图像. 高分辨率 CCD 的分辨率为 1628 pixel $\times$ 1236 pixel, 采集图像的帧频率为 20 frame $\cdot$ s⁻¹. 在深过冷条件下, 金属的晶体凝固速率非常快, 可到每秒几十米^[27]. 为了分析样品在不同过冷度下凝固时的固液界面迁移情况, 从而计算固液凝固的枝晶生长速率, 使用超高速图像采集系统拍摄样品再辉时的表面瞬态变化, 超高

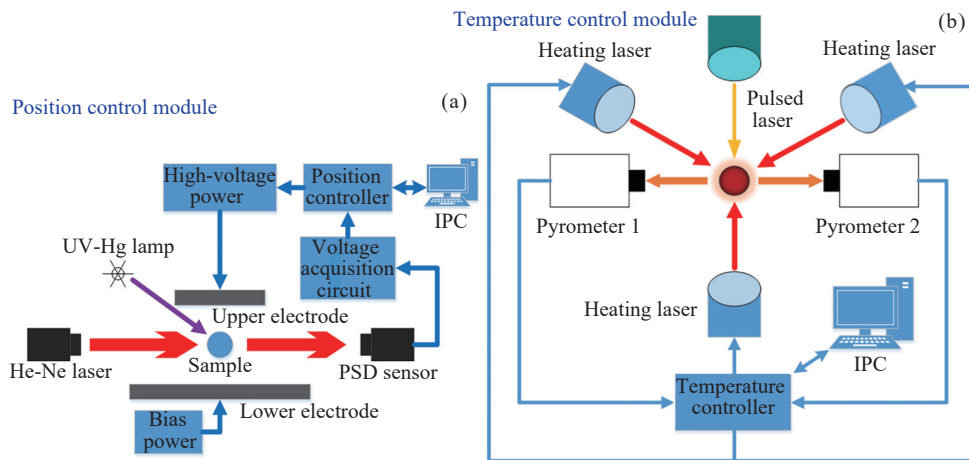


图 2 静电悬浮控制单元原理

Fig. 2 Schematic diagram of control unit of electrostatic levitation

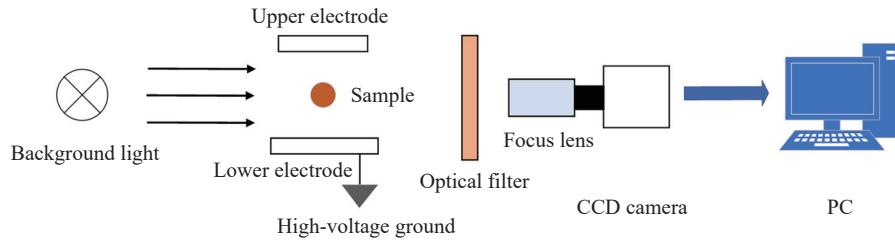


图3 图像采集系统原理

Fig. 3 Schematic diagram of image acquisition system

速相机在分辨率 $150 \text{ pixel} \times 150 \text{ pixel}$ 的帧率可达 $2 \times 10^5 \text{ frame} \cdot \text{s}^{-1}$.

1.2 形核热力学原理

经典形核理论即描述新相的形成理论, 从热力学驱动力角度分析, 新相形成的必要条件是在母相中因结构起伏形成基于原子或分子单元的小团簇, 团簇突破母相的热力学稳定性, 在不同的热力学驱动力和动力学势垒作用下形成相变的过程^[28]. 由热力学第二定律可知, 形核需要克服热力学驱动力, 即体积自由能和界面自由能等负驱动力, 以及动力学能垒临界形核功, 从而形成临界晶核. 当熔融液态的母相中形成一个结晶团簇时, 设晶核的形状为球形, 半径为 R , 则吉布斯自由能可表示为^[29]

$$\Delta G = -\frac{4}{3}\pi R^3 \Delta G_m + 4\pi R^2 \sigma. \quad (1)$$

其中, ΔG_m 为固液两相单位体积吉布斯自由能的差, σ 为固液界面自由能. 体系内形成尺寸大小为 r^* 的临界晶核需要克服的临界形核势垒可表示为^[29]

$$\Delta G^* = \frac{16\pi\sigma^3}{3\Delta G_m^2} = \frac{1}{3}A\sigma. \quad (2)$$

其中, A 为样品表面积.

当体系吉布斯自由能 ΔG 为负值时, 发生相变. 根据经典形核理论, 固相液相之间的自由能之差为材料相变提供热力学驱动力. 液相向固相相变过程需使样品维持在一定的过冷度下, 过冷度与固液两相的吉布斯自由能之差为正相关, 高过冷度对应大自由能之差, 因此相变的驱动力也越强, 形核率越高. 在单质熔体中, 形核率主要由过冷度决定. 过冷度较低时, 形核率很低, 接近于零, 当达到一定过冷度时, 形核率才骤然增大^[30].

静电悬浮实验中, 无容器非接触式加热方式避免了非均匀形核. 由于材料凝固发生时的过冷度难以人

为控制, 因此高质量可控获得不同过冷度下的凝固样品存在难点. 为了分析不同过冷度下样品的形核凝固机制, 通过引入基于激光脉冲触发的同质均匀形核技术对悬浮过冷态的高温难熔样品进行形核触发实验.

激光脉冲触发形核凝固的原理是通过一台激光脉冲触发器对过冷态的熔融样品聚焦发射高功率的不同脉冲宽度的脉冲激光, 在样品表面形成局部温度梯度场, 提供形核所需的能量起伏和结构起伏, 形成临界晶核突破形核势垒, 实现样品在不同过冷温度条件下的形核凝固.

1.3 温度梯度下激光触发形核原理

静电悬浮无容器实验系统采用激光加热法对高熔点金属及合金材料进行加热, 利用激光高亮度特性, 激光与物质相互作用时, 材料物质吸收光子能量转换为热能, 导致材料温度上升^[31]. 由于激光是由受激辐射产生的, 传播特性与普通球面光波存在较大差异, 因此常用激光束或高斯光束描述激光的波形特征. 基模高斯光束是激光束的典型形式, 激光谐振腔发射的基模行波在横截面上的光强分布为圆斑, 中心处光强最强, 沿边缘方向渐弱, 为高斯分布状态^[32]. 高斯光束界面的场振幅可表达为

$$E(r) = E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2}\right). \quad (3)$$

其中, E_0 为高斯光束振幅最大的值, r 为距离激光光斑中心的距离, ω 为光束在束腰的半径.

高斯光束的功率密度分布为

$$I(r, z) = I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2}\right) \exp(-\beta z). \quad (4)$$

其中, β 为光的吸收系数, z 为光束传播方向.

在旁轴近似下, 基模高斯光束的电场振幅在空间中的分布为^[33]

$$E(r, z) = \frac{E_0}{\omega(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)} \right] \exp \left\{ -i \left[kz + k \frac{r^2}{2R(z)} - \phi(z) \right] \right\}. \quad (5)$$

其中, E_0 为束腰中心场强, $\omega(z)$ 为光束半径, kz 为平面波相位, $k \frac{r^2}{2R(z)}$ 为波前曲率相位, $R(z)$ 为波前曲率半径, $R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z} \right)^2 \right]$, $\phi(z)$ 为轴向相位漂移, $\phi(z) = \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right)$, z_R 为瑞利长度, $z_R = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda}$, ω_0 为束腰半径.

功率谱密度为光功率在空间域的功率分布, 由电场振幅的平方给出 (忽略常数因子), 其表达式为

$$I(r, \theta, z) = I_0 \frac{\omega_0^2}{\omega^2(z)} \exp \left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z)} \right] \exp \left\{ -i \left[kz + k \frac{r^2}{R(z)} - 2\phi(z) \right] \right\}. \quad (6)$$

其中, I_0 为束腰中心的峰值强度.

当激光与材料相互作用时, 能量分布正比于电场振幅的模平方, 高斯光束的能量集中在光束中心, 随横向距离呈指数衰减. 高斯光束的光斑直径越小, 能量越集中. 当使用大功率激光加热物体时, 基于高斯光束能量分布原理, 被加热物体的光斑中心和边缘会因光束能量强度不同产生较大的温度梯度, 局部温度梯度引起实验样品内部结构起伏和能量起伏概率加大, 程度加深, 从而创造形核条件, 高质量可控地使样品在不同过冷度下触发形核.

2 激光脉冲触发形核仿真分析

使用 COMSOL 多物理场仿真分析工具对激光加热下样品内部温度进行仿真分析, 用以获得静电悬浮下被激光加热的样品内的温度场分布情况. 基于三维结构模型进行热仿真分析, 图 4 为样品网格结构, 样品形状为球体, 材料为锆, 直径 2 mm, 样品吸收率为 0.25, 加热激光热源选用高斯圆形热源, 加热激光输出功率为 9 W, 根据本研究中静电悬浮装置指标, 加热激光的光束光斑直径设置为 0.2 mm, 功率谱密度设置为 $2.86 \times 10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$; 光束光斑直径设置为 1 mm, 功率谱密度设置为 $1.146 \times 10^7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$. 在激光非接触式加热的热辐射仿真过程中, 锆材料发射率

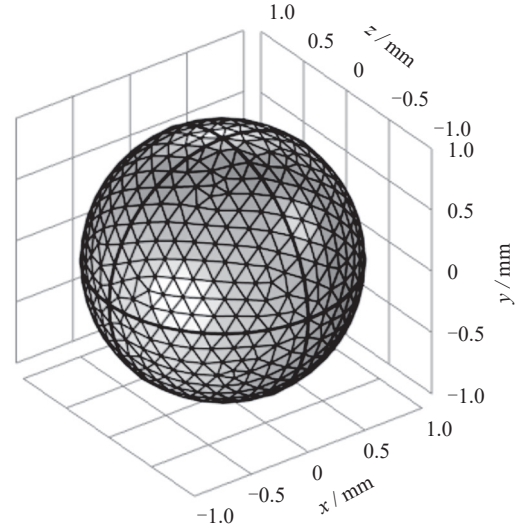


图 4 实验样品的网格划分

Fig. 4 Meshing of tested sample

设置为 0.32, 环境温度设置为 20°C , 仿真时间为 10 s, 图 5 为样品不同时刻样品温度分布仿真结果.

一束激光束斑直径为 0.2 mm 对样品进行激光加热情况下, 样品在不同时刻的横切面的温度变化仿真可以看出激光照射处, 样品表面的温度一直明显高于其他地方的温度值, 形成较大温度梯度. 使用一束激光, 光束直径越小, 激光能量越大, 为局部温度梯度下激光脉冲触发形核实验奠定了基础. 同时, 在悬浮加热熔化过程中, 实验样品受热的均匀程度会影响样品悬浮稳定度, 样品受热不均匀导致样品晃动较大, 不利于触发形核凝固, 因此需要确定在不同加热激光数量和激光光束直径条件下, 温度分布均匀的实验方案.

在不同数量的激光和不同激光光束直径条件下, 根据实际实验需求, 选取光束直径分别为 0.2 mm 和 1 mm, 功率谱密度分别为 $2.86 \times 10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 和 $1.146 \times 10^7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 时进行对比分析, 样品的平均温度达到 $1800 \pm 10 \text{ K}$, 热趋于稳态下的样品横截面温度场分布如图 6 所示. 从仿真结果可知, 使用三束加热激光并且激光光斑直径为 1 mm 的加热方式与其他方式相比, 样品内的温度分布更为均匀, 单束激光直径为 0.2 mm 的加热方式产生的温度梯度场最大.

通过有限元仿真分析, 样品在不同加热方式下, 使用一束激光, 光束直径为 0.2 mm, 可以提供的最大温度梯度和平均温度梯度较大 (如图 7a~b 中红色实线所示, 此处温度梯度为范式, 反映温度变化的总体

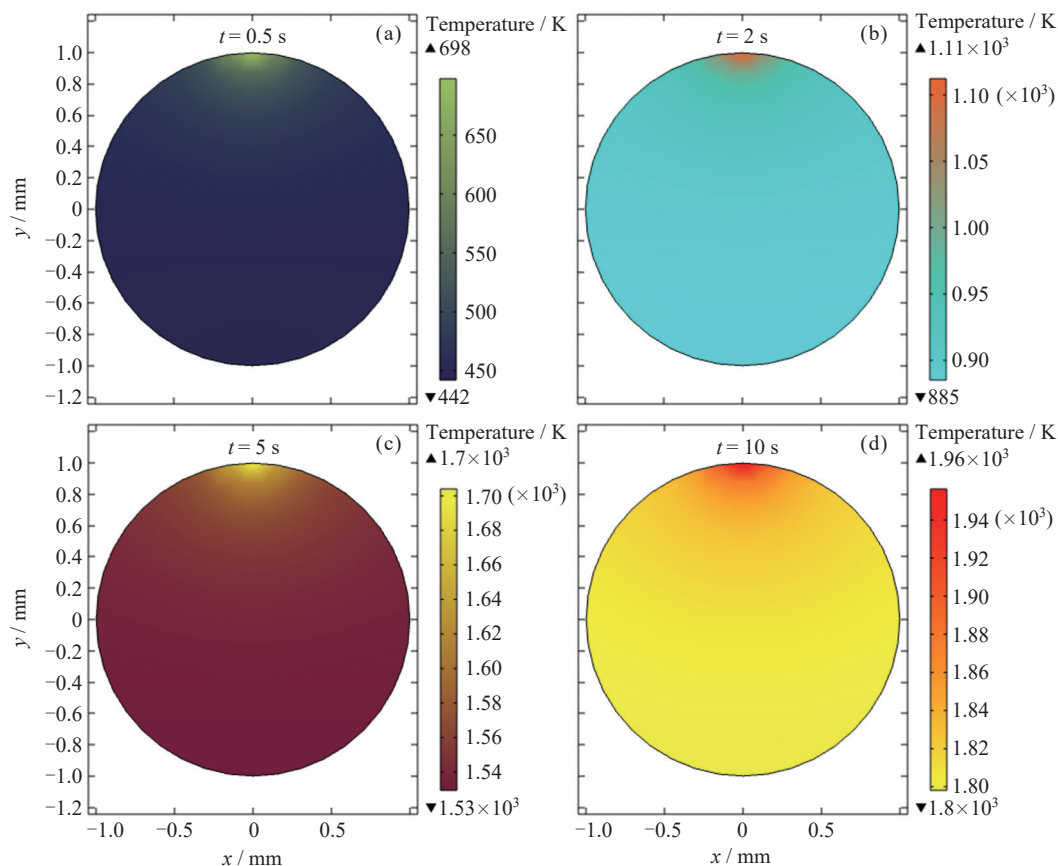


图5 激光光束半径为 0.2 mm 时不同时刻样品温度分布

Fig. 5 Temperature distribution inside the sample at different times when the laser beam radius is 0.2 mm

强度), 因此可作为激光脉冲触发形核实验的触发条件. 使用三束激光, 光束直径为 1 mm, 可提供较为均匀的温度分布, 最大温度差为 11 K, 最大温度梯度和平均温度梯度均为最小, 用于作为样品加热到融化过程中的激光器加热及温度保持实验条件. 单束激光, 光束直径为 0.2 mm, 在 2 s 内能提供的最大温度梯度和平均温度梯度最大. 仿真结果与理论上高斯光束光斑直径越小, 激光能量越大, 形成温度梯度越大的结论相符.

如图 8 所示, 不同激光光束数量和激光光斑直径情况下, 热仿真分析趋于稳态时样品表面温度变化. 结果如下: 一束激光, 光斑直径为 0.2 mm, 趋于稳态的平均温度为 1000 K 时, 样品的最大温度值变化量为 43.1 K; 三束激光, 光斑直径为 1 mm, 趋于稳态的平均温度为 1000 K 时, 样品温度变化只有 4.7 K. 由此可见, 三束激光, 光斑直径为 1 mm 的加热方式能够提高样品在温度趋于稳定状态下的温度均匀性. 一束激光加热, 光斑直径为 0.2 mm 可实现较大的局部

温度梯度, 从而实现局部温度梯度下的激光脉冲触发形核.

3 实验结果与分析

研究中实验样品为铅球, 直径为 2 mm, 样品熔点为 2125 K, 基于静电悬浮无容器装置开展激光脉冲触发形核实验技术验证. 使用经过仿真结果验证的高斯光束, 光斑直径为 0.2 mm 的单束激光开展不同过冷态下的液态铅样品进行触发形核实验, 使用光斑直径为 1 mm 的三束加热激光加热融化样品和保持过冷温度, 统计分析样品铅在自发形核凝固和激光脉冲触发形核凝固条件下铅的形核凝固时间, 并进行对比分析.

3.1 自发形核凝固实验

样品铅被激光器加热融化后, 控制加热激光器的输出功率, 使样品温度维持在一定的过冷度或过热度下, 该过程称为样品的熔融保持过程, 该过程中样品

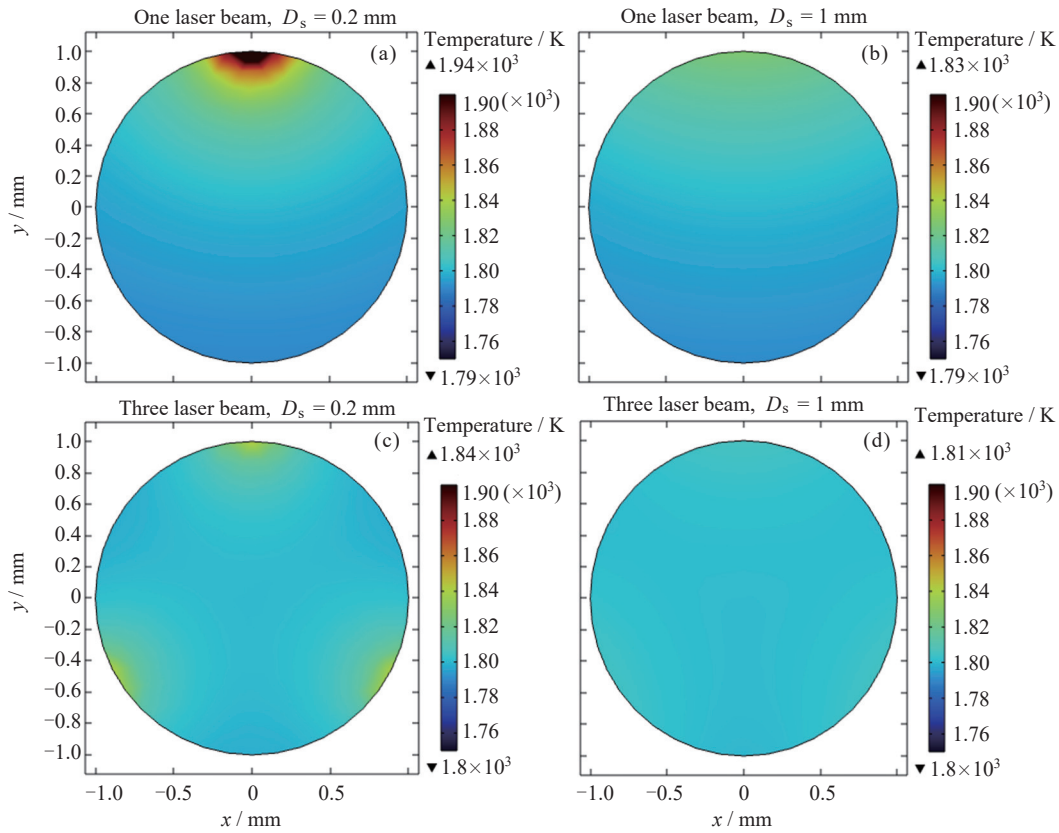
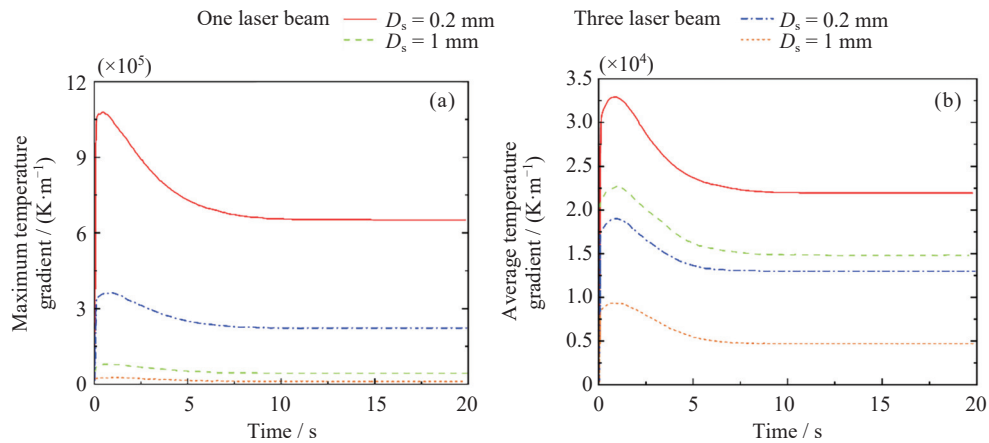
图 6 平均温度 1800 ± 10 K 的横截面温度场分布Fig. 6 Temperature distribution in the cross section of the sample with 1800 ± 10 K average temperature under the thermal equilibrium state

图 7 样品内的温度梯度仿真结果. (a) 最大温度梯度, (b) 平均温度梯度

Fig. 7 Simulated temperature gradient in the sample during heating. (a) Maximum temperature gradient, (b) average temperature gradient

温度为样品的过冷保持温度. 通过实验验证, 实验样品锆, 可以控制其保持温度在 $1823 \sim 2423$ K 范围内进行调节.

图 9 为样品锆温度保持状态下的温度和加热激光功率的变化情况. 从图 9(a) 局部放大结果中可以看出, 熔融样品的保持温度无论在 2173 K 的过热阶

段还是在 1873 K 的过冷阶段, 通过加热激光器功率快速地调节使温度控制在 ± 3 K 之内, 从而实现均匀的温度场控制. 加热激光输出功率在 2173 K 时维持在 20 ± 1 W, 实验测试结果如图 9(b) 中实线所示. 三束加热激光器对熔融样品温度的精准控制, 为激光脉冲形核触发实验提供了过冷态下的稳定均匀的温度场.

自发形核实验过程如下, 首先将预热后的锆样品进行稳定悬浮, 打开加热激光器, 根据设定的目标加热温度逐步提高激光器输出功率加热悬浮样品, 待样品加热至熔点温度后, 维持激光器输出功率, 使样品完全熔化. 此时小幅度调整加热激光器输出功率, 使熔融样品的温度保持在特定过冷度下, 记录样品此特定过冷度 ΔT (单位 K) 下, 维持过冷状态到自发形核凝固之间的保持时间 t_h (单位 s). 通过多次实验统计

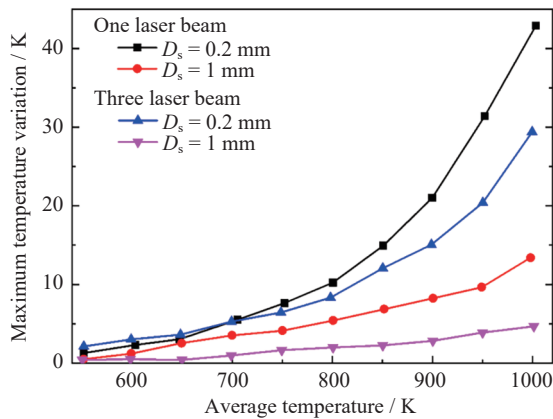


图 8 热趋于稳定状态下样品最大温度变化

Fig. 8 Maximum temperature variation of the sample under thermal nearby equilibrium state

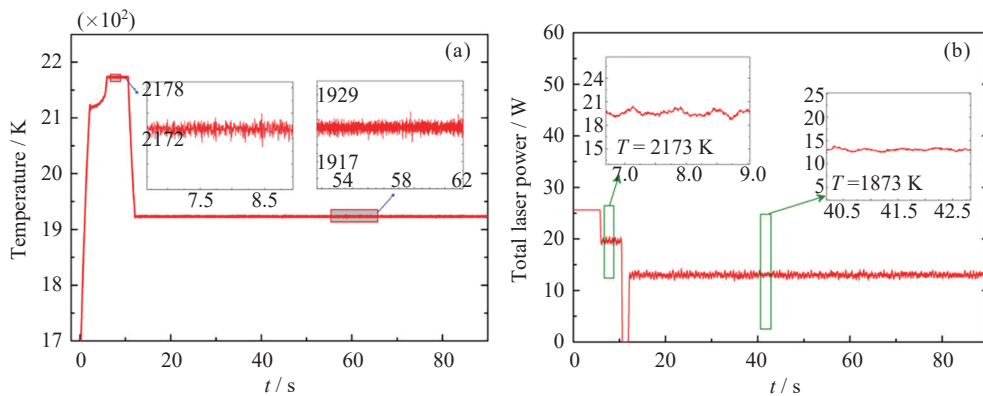


图 9 过冷态下样品锆的温度及激光总功率随时间的变化

Fig. 9 Variation of zirconium temperature and total laser power with time during undercooling

平均的方式减少偶然误差对实验的影响, 每个特性过冷度下的自发形核凝固实验重复 20 次. 本研究完成了过冷度 198~306 K 范围内的锆样品自发形核实验, 获得凝固保持时间 t_h 和过冷度 ΔT 的实验数据, 通过拟合得到不同过冷度下自发形核凝固所需时间

$$t_h = 3.05 \times 1.05^{(320 - \Delta T)} - 1.98. \quad (7)$$

根据图 10 所示实验结果可知, 随着过冷度的减小, 样品自发形核凝固所需的过冷保持时间呈指数增长, 实验结果验证了 1.2 节形核动力学所描述的经典形核理论.

3.2 激光脉冲触发形核凝固实验

基于激光脉冲触发的激光加热法利用激光高亮度特性, 激光与物质相互作用时, 材料物质吸收光子能量转换为热能, 导致材料温度上升, 这一过程具有复杂光电场耦合现象^[33]. 根据仿真验证结果, 实验中使用单束激光, 光束直径为 0.2 mm 的激光作为大温度梯度激光脉冲触发形核能量源, 另外使用三束激光, 光束直径为 1 mm 的激光用于保持均匀的过冷温度, 开展激光脉冲触发形核实验. 在激光脉冲输出频率固定, 光束半径相同的情况下, 激光脉冲宽度持续时间越长, 提供的结构起伏和能量起伏的概率越大. 在不同脉冲宽度下, 激光脉冲触发形核温度曲线如图 11 所示, 图中最后一个尖峰为激光脉冲触发产生的形核再辉温度曲线. 实验过程与自发形核凝固实验一致, 重复 20 次, 统计平均消除偶然误差. 在不同脉冲宽度条件下进行实验. 不同过冷度下, 激光脉冲触发形核实验的时间与理论上形核凝固时间的对比关系如图 12 所示. 通过图 12 实验数据分析可得, 样品

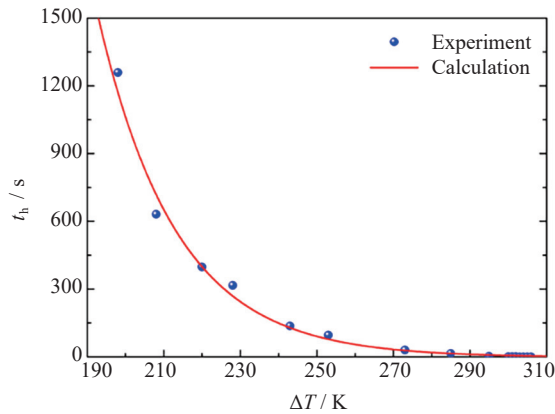


图 10 不同过冷度下自发形核凝固时间拟合曲线

Fig. 10 Fitted curves of solidification time of spontaneous nucleation at different supercooling degrees

过冷保持时间与激光脉冲触发形核时间比值大, 说明激光脉冲触发形核凝固的方法在该过冷度下缩短了形核时间, 高质量控制样品在不同过冷度下触发形核. 在过冷度为 195 ± 3 K 时, 样品形核凝固过程中所需的时间比自发形核所需时间降低了 $3/4$. 在过冷度为 $250 \sim 260$ K 的范围内, 由于过冷形核所需相变驱动势能与本实验中激光脉冲光斑总能量大小相当, 因此形核时间比率缩短分数较小; 当过冷度大于 265 K 时, 过冷形核所需相变驱动势能更大, 较小的 (20 ms 和 70 ms) 激光脉冲能量能够提供较大的能量扰动, 从而使形核时间比率缩短至 $1/7$. 本实验验证了激光脉冲产生的局部温度梯度场缩短了深过冷触发形核凝固时间, 高质量可控地触发样品形核, 从而获得不同过冷度下的凝固样品.

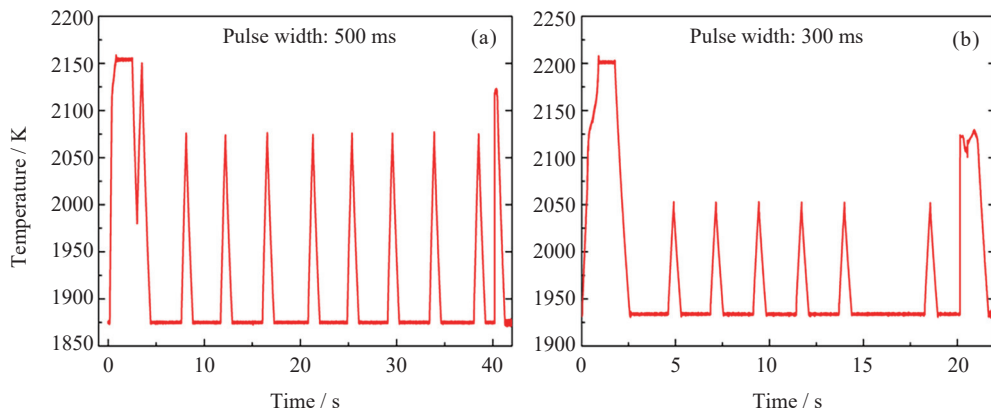


图 11 不同脉冲激光宽度锆的形核温度及时间

Fig. 11 Nucleation temperature and time of zirconium with different pulse laser width

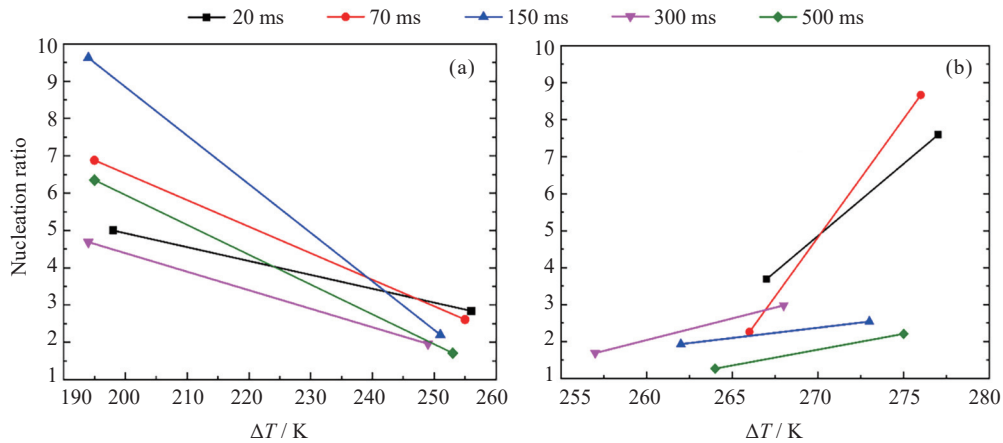


图 12 样品锆过冷保持时间与激光脉冲触发形核时间比值

Fig. 12 Ratio of supercooling holding time and laser pulse-triggered nucleation time of zirconium

材料的枝晶生长机制对于分析材料的凝固过程有重要意义, 基于界面能各向异性的 LKT/BCT (Lipton-Kurz-Trivedi/Boettinger-Coriell-Trivedi) 模型^[22] 常用于描述枝晶的生长过程. 样品的枝晶生长速度随过冷度增大呈现指数增长趋势, 枝晶微观形态与枝晶生长速度大小密切相关. 为进一步验证本文提出的激光脉冲局部温度梯度触发形核技术的有效性, 使

用超高速相机 (i-SPEED508) 以 $2 \times 10^5 \text{ frame} \cdot \text{s}^{-1}$ 的拍摄速率对样品锆在激光脉冲触发形核凝固过程中的表面瞬态图像进行采集, 通过凝固过程中样品固液界面迁移的速度来计算样品的枝晶凝固速度. 样品锆在再辉时的固液界面迁移如图 13 所示, 图中暗色部分为过冷的液态锆, 白色明亮色部分为再辉凝固后的固态锆.

从图 13 可清晰看出样品的初始形核点位于液态

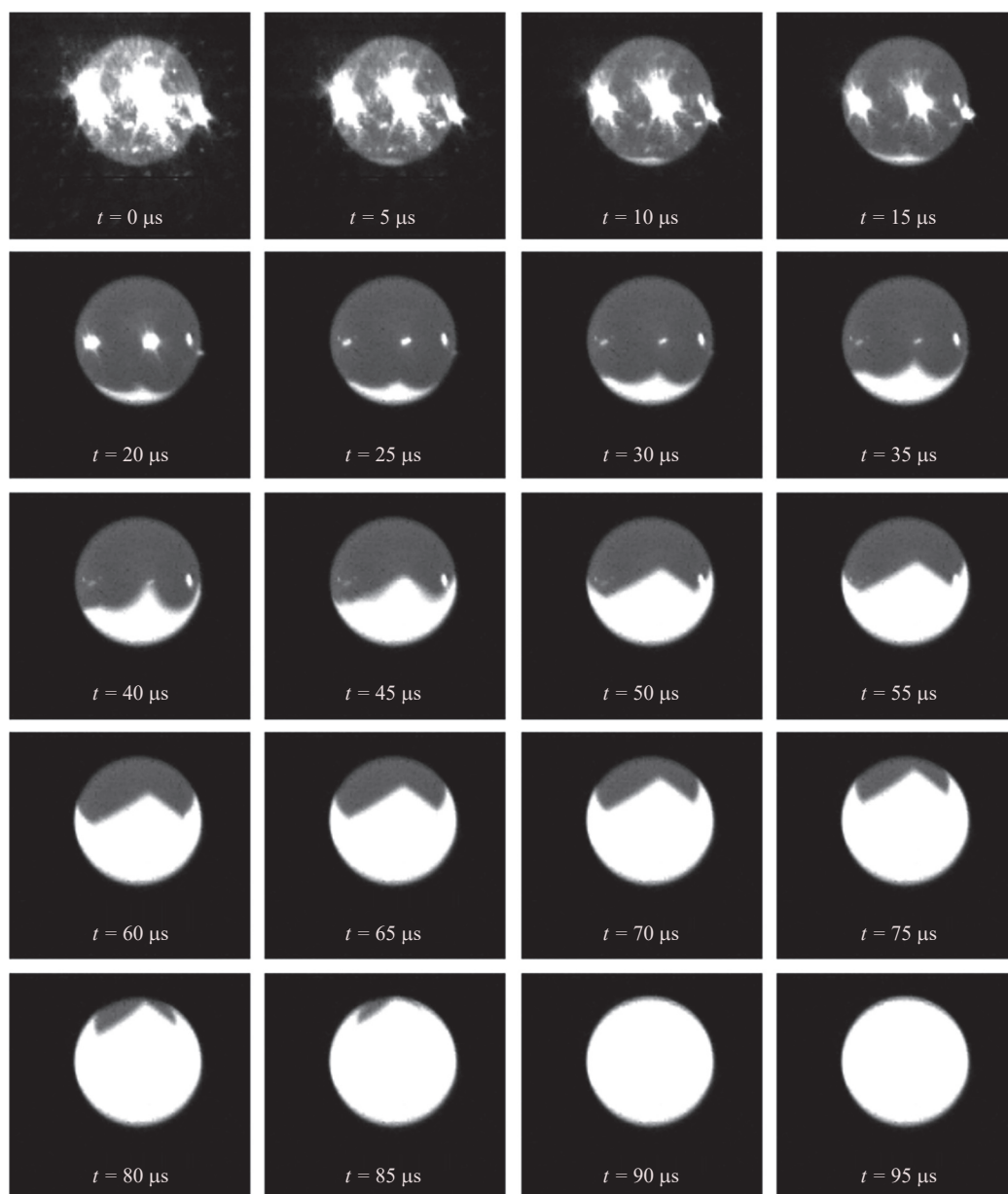


图 13 样品锆在 245 K 过冷度下凝固时的表面固液界面迁移情况 (暗色部分为过冷的液态锆, 明亮色部分为再辉凝固后的固态锆. 高速相机拍摄速率为 $2 \times 10^5 \text{ frame} \cdot \text{s}^{-1}$)

Fig. 13 Surface solid-liquid interface migration situation of zirconium under 245 K undercooling (The dark parts of the picture are liquid zirconium that is supercooled, and the bright white parts are solid zirconium that has recized. Shooting rate of high-speed camera is $2 \times 10^5 \text{ frame} \cdot \text{s}^{-1}$)

锆底部白色区域, 随着时间推移, 该区域不断向上迁移. 图片中间部位的亮斑为激光光斑照射形成的亮点, 而非形核再辉释放能量产生的亮点, 再辉凝固过程在 $95\text{ }\mu\text{s}$ 内完成. 使用标准尺寸 2 mm 的样品球对图像像素进行标定后, 通过固液界面边缘迁移的像素点和记录的时间之间的关系计算出样品锆激光脉冲触发形核凝固时的固液界面迁移速度 (见图 14), 计算枝晶生长速度模型涉及的物理参数列于表 1. 由计算可得, 过冷度为 245 K 时, 锆枝晶生长速率为 $23.1\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Wang 等^[34] 通过静电悬浮法测量了高纯度锆的枝晶生长速率与过冷度的关系, 其测得在 245 K 过冷度下锆的枝晶生长速率为 $22.2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. 在相同的过冷度下, 本工作与文献^[34] 的测量结果相符, 误差在 5% 以内.

4 结论

采用激光脉冲触发形核实验技术, 在不同过冷度

表 1 计算涉及的物理参数
Table 1 Physical parameters for calculation

参数	锆
$\Delta H_m / (\text{J}\cdot\text{mol}^{-1})$	$15436.6^{[35]}$
$C_p / (\text{J}\cdot\text{mol}\cdot\text{K}^{-1})$	$42.42^{[35]}$
$\Gamma / (\text{K}\cdot\text{m})$	$5.42\times 10^{-7}[27]$
$A / (\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1})$	$1.59\times 10^{-5}[27]$
$v_0 / (\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	$2000^{[27,36,37]}$

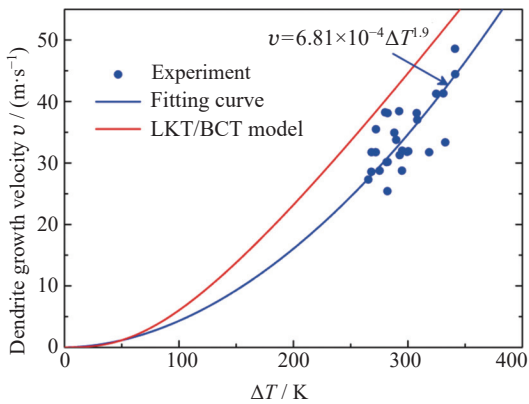


图 14 样品锆激光脉冲触发形核凝固固液界面迁移速度
Fig. 14 Migration velocity of solid-liquid interface for laser pulse-triggered nucleation solidification of zirconium

下, 使用同一激光光束光斑直径 0.2 mm , 不同脉冲宽度的激光对实验样品进行局部温度梯度条件下的触发形核实验研究. 从能量的角度分析, 光斑直径较小的激光脉冲具有较大的激光能量, 聚焦液态样品后使样品内部局部温度梯度增大, 导致能量和结构的起伏概率加大, 程度加深, 使该区域的分子或原子团簇有更容易突破形核势垒, 形成晶核并凝固, 获得不同过冷度下的凝固样品. 实验结果表明: 在控制较小过冷度下触发形核实验中, 不同宽度的激光脉冲触发样品表面形成局部温度梯度, 使样品内部产生更大程度结构起伏和能量起伏是影响激光脉冲触发形核的关键因素; 在控制较大过冷度下触发形核实验中, 较小的激光脉冲宽度可提供较大的能量扰动从而触发样品形核.

针对静电悬浮条件下高质量可控地获得最大过冷度范围内不同过冷度下的形核样品存在控制难点的问题, 提出基于激光脉冲局部温度梯度触发形核的同质均匀形核方法, 以锆为样品开展了热仿真分析研究, 基于仿真分析结果开展静电悬浮熔融过冷状态下的实验验证. 实验结果证明, 采用激光脉冲局部温度梯度触发形核方法使液态锆在不同过冷度下发生了同质形核凝固行为. 本文提出的激光脉冲局部温度梯度触发形核方法能够高质量控制样品在不同过冷阶段触发形核, 从而获得在最大过冷度范围内的不同过冷度形核凝固样品, 为研究高温难熔材料的过冷形核机理和快速凝固机制提供有效支持.

参考文献

[1] WANG F L, DAI B, LIU X F, *et al.* Containerless heating process of a deeply undercooled metal droplet by electrostatic levitation[J]. *Chinese Physics Letters*, 2015, **32**(11): 114101
[2] YU J D, PARADIS P F, YODA S, *et al.* Dielectric properties of BaTiO_3 synthesized by containerless processing technique[J]. *Journal of the Korean Physical Society*, 2005, **46**(1): 15-18
[3] ISHIKAWA T, KOYAMA C, PARADIS P F, *et al.* Densities of liquid Re, Os, and Ir, and their temperature dependence measured by an electrostatic levitator[J]. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2020, **92**: 105305
[4] ZHAO D D, YANG F, HOLLAND-MORITZ D, *et al.* *In situ* studies of liquid-liquid phase separation, solidification sequence and dendrite growth kinetics in electrostatically

- levitated Ti-Y alloys[J]. *Acta Materialia*, 2021, **213**: 116962
- [5] LI D M, WANG W L, JIA Y, *et al.* Structural optimization of radial containment ultrasonic suspension bearing[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2021, **29**(10): 2375-2385 (李东明, 王万雷, 贾颖, 等. 径向包容式超声悬浮轴承结构优化[J]. *光学精密工程*, 2021, **29**(10): 2375-2385)
- [6] GREFFRATH F, PRIELER R, TELLE R. A new method for the estimation of high temperature radiant heat emittance by means of aero-acoustic levitation[J]. *Infrared Physics & Technology*, 2014, **67**: 333-337
- [7] LIU H, YANG Z P, WU D Y. Estimation of rotor speed using displacement signals in magnetic suspended flywheel[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2020, **28**(5): 1116-1123 (刘虎, 杨振鹏, 武登云. 基于位移信号的磁悬浮飞轮转速估计[J]. *光学精密工程*, 2020, **28**(5): 1116-1123)
- [8] MOHR M, WUNDERLICH R K, KOCH S, *et al.* Surface tension and viscosity of Cu₅₀Zr₅₀ measured by the oscillating drop technique on board the international space station[J]. *Microgravity Science and Technology*, 2019, **31**(2): 177-184
- [9] JEON S, SANSOUCIE M P, MATSON D M. Hyper-cooling limit, heat of fusion, and temperature-dependent specific heat of Fe-Cr-Ni melts[J]. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 2019, **138**: 51-58
- [10] LEE J, SANSOUCIE M P. Experiments using a ground-based electrostatic levitator and numerical modeling of melt convection for the iron-cobalt system in support of space experiments[J]. *Jom*, 2017, **69**(8): 1298-1302
- [11] TAMARU H, KOYAMA C, SARUWATARI H, *et al.* Status of the Electrostatic Levitation Furnace (ELF) in the ISS-KIBO[J]. *Microgravity Science and Technology*, 2018, **30**(5): 643-651
- [12] HERLACH D M, KOBOLD R, KLEIN S. Crystal nucleation and growth in undercooled melts of pure Zr, binary Zr-based and ternary Zr-Ni-Cu glass-forming alloys[J]. *Jom*, 2018, **70**(5): 726-732
- [13] LEE G W, JEON S, PARK C, *et al.* Crystal-liquid interfacial free energy and thermophysical properties of pure liquid Ti using electrostatic levitation: hypercooling limit, specific heat, total hemispherical emissivity, density, and interfacial free energy[J]. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 2013, **63**: 1-6
- [14] KOSTANOVSKII A V, KOSTANOVSKAYA M E. Thermophysical properties of stable and supercooled liquid carbon[J]. *Measurement Techniques*, 2019, **62**(2): 532-539
- [15] HU L, JIN Y J, LIN M J, *et al.* Temperature dependence of thermophysical properties for liquid Zr-Sn-Nb-Fe alloy measured at electrostatic levitation state[J]. *Chemical Physics Letters*, 2021, **776**: 138667
- [16] SUN Y N, WANG F L, YU Q, *et al.* Thermophysical property measurements by electrostatic levitation in material science[J]. *Materials Reports*, 2016, **30**(S2): 253-258 (孙一宁, 王飞龙, 于强, 等. 静电悬浮条件下的材料典型热物理性质测量[J]. *材料导报*, 2016, **30**(S2): 253-258)
- [17] CHEN D Y, GUO Q Y, DONG W B, *et al.* Control system of electrostatic levitation based on high-speed vision[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2019, **27**(11): 2343-2353 (陈东阳, 郭清远, 董文博, 等. 基于高速视觉的静电悬浮控制系统[J]. *光学精密工程*, 2019, **27**(11): 2343-2353)
- [18] XUE S Q, DONG W B, CHEN D Y, *et al.* Analysis of electrostatic levitation control system and oscillation method for material properties measurement[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2021, **92**(6): 065111
- [19] RATHZ T J, ROBINSON M B, HYERS R W, *et al.* Triggered nucleation in Ni₆₀Nb₄₀ using an electrostatic levitator[J]. *Journal of Materials Science Letters*, 2002, **21**(4): 301-303
- [20] HERLACH D M. Non-equilibrium solidification of undercooled metallic melts[J]. *Metals*, 2014, **4**(2): 196-234
- [21] AOYAMA T, PARADIS P F, ISHIKAWA T, *et al.* Observation of rapid solidification of deeply undercooled Si melts using electrostatic levitation[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2004, **375/376/377**: 460-463
- [22] YANG S J. Electrostatic Levitation Processing and Rapid Solidification Mechanism of Refractory Metallic Materials[D]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University, 2018 (杨尚京. 难熔金属材料的静电悬浮过程与快速凝固机理研究[D]. 西安: 西北工业大学, 2018)
- [23] CHEN H M, ZHAO X Y. Principles and Applications of Laser[M]. Beijing: Publishing House of Electronics Industry, 2009 (陈鹤鸣, 赵新彦. 激光原理及应用[M]. 北京: 电子工业出版社, 2009)
- [24] ANTONY K, ARIVAZHAGAN N, SENTHILKUMARAN K. Numerical and experimental investigations on laser melting of stainless steel 316 L metal powders[J]. *Journal of Manufacturing Processes*, 2014, **16**(3): 345-355
- [25] PARADIS P F, ISHIKAWA T, YODA S. Non-contact measurements of thermophysical properties of niobium at high temperature[J]. *Journal of Materials Science*, 2001, **36**(21): 5125-5130
- [26] PARADIS P F, ISHIKAWA T, SAITA Y, *et al.* Containerless property measurements of liquid palladium[J]. *International Journal of Thermophysics*, 2004, **25**(6): 1905-1912
- [27] WANG L, HU L, ZHAO J F, *et al.* Ultrafast growth kinetics of titanium dendrites investigated by electrostatic levitation experiments and molecular dynamics simulations[J]. *Chemical Physics Letters*, 2020, **742**: 137141
- [28] LIU F. Design of nanostructured materials by thermos-

- kinetic couple[J/OL]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, (2023-04-10). <http://kns.cnki.net/kcms/detail/43.1238.TG.20230410.1325.001.html> (刘峰. 基于热力学-动力学耦合的纳米晶结构材料设计 [J/OL]. 中国有色金属学报, 1-15[2025-06-27]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/43.1238.TG.20230410.1325.001.html>)
- [29] VINET B, MAGNUSSON L, FREDRIKSSON H, *et al*. Correlations between surface and interface energies with respect to crystal nucleation[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2002, **255**(2): 363-374
- [30] TURNBULL D. Formation of crystal nuclei in liquid metals[J]. *Journal of Applied Physics*, 1950, **21**(10): 1022-1028
- [31] WU H M. Research on Laser Heating System Based on Spot Detection[D]. Taiyuan: North Central University, 2019 (武慧敏. 基于光斑检测的激光加热系统研究 [D]. 太原: 中北大学, 2019)
- [32] YU K, HUANG D X, YIN J J, *et al*. Reflected-intensity distribution of a thin-film filter with oblique incidence of a Gaussian beam under-parallel case[J]. *Chinese Journal of Laser*, 2012, **39**(8): 0807003 (俞侃, 黄德修, 尹娟娟, 等. 高斯光束斜入射非平行薄膜滤光片的反射光强分布 [J]. *中国激光*, 2012, **39**(8): 0807003)
- [33] YOU K M. Research on the Propagation and Focusing Properties of Broadband Laser Pulses[D]. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2009 (游开明. 宽带脉冲激光的传播和聚焦特性研究 [D]. 武汉: 武汉理工大学, 2009)
- [34] WANG L, HU L, YANG S J, *et al*. Thermophysical properties and rapid dendritic growth of liquid zirconium under electrostatic levitation condition[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2018, **28**(9): 1816-1823 (王磊, 胡亮, 杨尚京, 等. 静电悬浮条件下液态锆的热物理性质与快速枝晶生长 [J]. 中国有色金属学报, 2018, **28**(9): 1816-1823)
- [35] LU X X, ZHANG M H, LIU X K, *et al*. Nucleation and solidification measurement of deep-undercooling molten zirconium under electrostatic levitation[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2023, **33**(3): 804-816 (陆潇晓, 张明辉, 刘晓珂, 等. 静电悬浮深过冷熔融锆形核凝固测量 [J]. 中国有色金属学报, 2023, **33**(3): 804-816)
- [36] YU J C, YAN J F, LI X, *et al*. Progress in ultrafast laser-induced nucleation and crystal growth[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, **48**(2): 0202020 (俞嘉晨, 闫剑锋, 李欣, 等. 超快激光调控晶体形核与生长过程研究进展 [J]. *中国激光*, 2021, **48**(2): 0202020)
- [37] LU X X, LIU X K, LI H, *et al*. RBF neural network in electrostatic levitation position control[J]. *Chinese Journal of Space Science*, 2022, **42**(5): 952-960 (陆潇晓, 刘晓珂, 李虎, 等. RBF神经网络在静电悬浮位置控制中的应用 [J]. *空间科学学报*, 2022, **42**(5): 952-960)

作者简介



王艳秋 1987年7月出生于河北省承德市, 现为中国科学院国家空间科学中心高级工程师, 博士研究生, 主要研究方向为静电悬浮无容器实验技术研究、空间科学实验技术研究及仪器研制。

E-mail: wangyanqiu@nssc.ac.cn



孙志斌(通信作者) 1978年4月出生于山西省运城市, 中国科学院国家空间科学中心研究员, 博士生导师, 主要研究方向为信息光电子学、空间科学实验技术和空间光电子测量仪器研制。

E-mail: zbsun@nssc.ac.cn