



مرواری بر پدیده‌های همرفت در سیالات تبخیری، غیرتبخیری و محلول‌های بسپاری

ندا باقرزاده^۱، علی عباسیان^{۲*}، محمد بهشاد شفیعی^۳

۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی صنایع پلیمر، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۴۵۱۵-۷۷۵.

۲- استادیار، گروه مهندسی پلیمر، آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۴۵۱۵-۷۷۵.

۳- دانشیار، دانشکده مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۹۵۶۷.

تاریخ دریافت: ۹۵/۴/۸ تاریخ بازبینی نهایی: ۹۵/۱۰/۴ تاریخ پذیرش: ۹۵/۱۱/۶ در دسترس بصورت الکترونیک: www.jscw.icrc.ac.ir

چکیده

جبش‌های همرفتی و تشکیل الگوهای سلولی در سیال از مسائل مهم در هیدرودینامیک فیزیکی-شیمیابی، انتقال جرم و گرما در سامانه‌های سیالی کم عمق و با سطح آزاد هستند. شناخت این نوع از جبش‌ها در محلول‌های بسپاری، به سبب اهمیت ویژه‌ای که در ساخت فیلم‌های نازک در صنایع مختلفی چون پوشرنگ، چسب، غشاها و سلول‌های خورشیدی دارند، مورد تمرکز بسیاری از پژوهش‌ها قرار گرفته است. به طور کلی، در این مرواری به پدیده‌های همرفت در سامانه‌های تک و چند جزئی غیرتبخیری و تبخیری، نظریه و سازوکارهای مرتبط با آن و همرفت در سامانه‌های پوششی پرداخته شده است. دریافت شده است که در درک و پیش‌بینی پدیده‌های همرفت در محلول‌های تبخیری، عدد مارانگونی حرارتی بسته‌هون و عدد مارانگونی غلطی از اهمیت به سزائی برخوردار هستند.

واژه‌های کلیدی

سلول بنارد، همرفت مارانگونی، شیو کشش سطحی، پوشش‌های پایه حلالی.

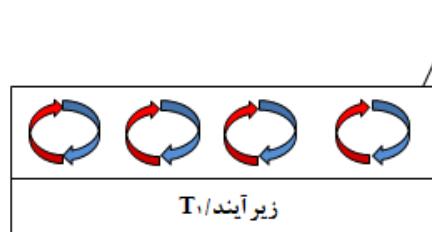
چکیده تصویری

جريان گرم بالارونده (پیکان قرمز)

جريان سرد پایین رونده (پیکان آبی)

سطح آزاد/
 T_0

$$T_0 > T_1$$



جريان همرفتی از کناره



سلول همرفتی در سطح



Review on Convection Phenomenons in Evaporative, Non-Evaporative Fluids and Polymer Solutions

N. Bagherzadeh¹, A. Abbasian^{2*}, M. Behshad Shafii³

1- Master Student, Polymer Engineering Department, Science and Research branch, Islamic Azad University, P.O.Box:775-14515, Tehran, Iran.

2- Assistant Professor, Polymer Engineering Department, Science and Research branch, Islamic Azad University, P.O.Box:775-14515, Tehran, Iran.

3- Associate Professor, Mechanical Engineering Department, Sharif university of Technology, P.O.Box:11365-9567, Tehran, Iran.

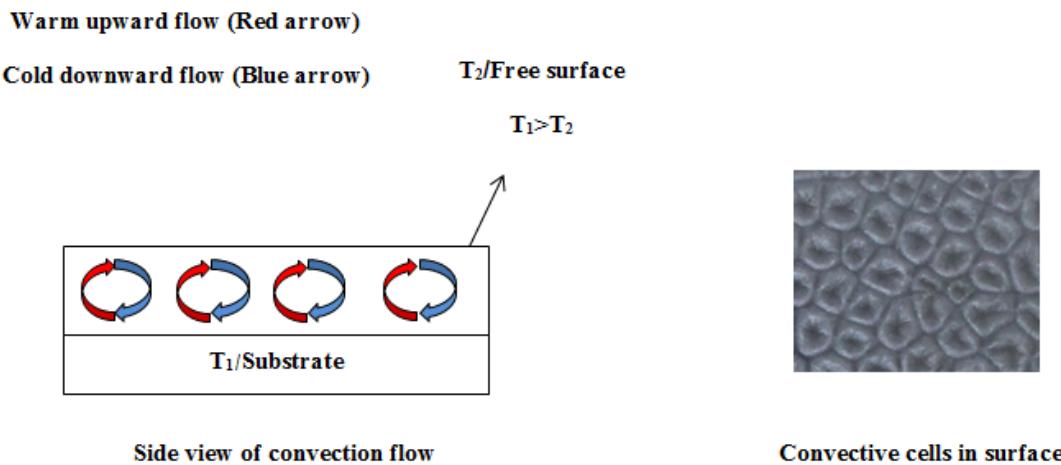
Abstract

Convective motions and cellular planform formation in fluid are important issues in physical-chemical hydrodynamic, mass and heat transfer in shallow fluid layer systems with free surface. Because of their special importance in the manufacture of thin films in diverse industries such as paints, adhesive, membranes and solar cells, recognition of these kind of motions in polymer solutions have been the focus of many investigations. Generally, this review deals with convection phenomenon in non-evaporative/evaporative, single/multi component systems, related theories and mechanisms. The main conclusion to be drawn is that Thermal-Marangoni Bestehorn and Solutal- Marangoni numbers are significant to understand and predict convection phenomena in evaporative solutions.

Keywords

Benard cell, Marangoni convection, Surface-tension gradient, Solvent borne coatings.

Graphical abstract



۱- مقدمه

پدیده‌های همرفت نخستین بار توسط فیزیکدان فرانسوی به نام هنری بنارد در لایه‌هایی با ضخامت‌های متغیر بین $0/4$ تا $1/2$ از سیال که به طور افقی روی کاربایه یا زیرآیندی^۳ با رسانش گرمایی عالی قرار گرفته و از کف گرم می‌شدن، به طور اصولی مورد بررسی قرار گرفت [۸]. آزمایش‌های بنارد بر مبنای سیالات انتخابی، تبخیری و غیرتبخیری، به دو دسته تقسیم و نتایج متفاوتی از هر دسته استنبط شده است؛ به طور مثال، موم سفید ذوب شده و دیگر سیالات غیرتبخیری با گرانروی مشابه موم می‌توانند رژیم همرفتی دائمی و الگوی پایا در قالب شبکه‌ای از شش ضلعی‌های منظم همانند شانه زنبور عسل ارائه دهند. با این وجود در سیال تبخیرشونده یا سیالی با گرانروی بسیار کم هیچ حالت ایستا یا طرح سطحی ثابتی به وجود نمی‌آید. به طور مثال در انر تبخیرشونده، سلول‌ها در ظاهر دستخوش جنبش انتقالی متناوب می‌شوند و به طور مداوم به واسطه‌ی تبادل یا تجمعی با سلول‌های مجاور رشد یافته و یا محبو می‌شوند. بر اساس آزمایش‌های بنارد، دما و شار گرمایی عوامل تاثیرگذار مهمی بر پدیده همرفت و اندازه سلول‌های ظاهر شده‌ی سطحی هستند؛ به طوری که در دما و شار گرمایی معین سرعت سیال غیرتبخیری در سلول‌ها مستقل از ضخامت لایه و به طور مستقیم متناسب با شار گرمایی است. در رژیم جریان غیر دائمی، اندازه سلول‌های سطحی متناسب با ضخامت لایه سیال است. مهم‌ترین نکته در مورد آزمایش‌های همرفتی بنارد، این است که در طول دوره‌ی پیش-همرفتی، گرانروی و رسانش گرمایی سیال قادر است آشفتگی‌های گرمایی و مکانیکی کوچک را تلف کرده و از بین ببرد، به طوری که هیچ همرفتی حاصل نشود. بنابراین، دو عامل بنیادی به همرفت طبیعی منتج می‌شود؛ نخست، شیو دمای بحرانی ویژه باید پیش از اینکه ناپایداری بتواند شروع شود، زیاد شود. دوم، جنبش‌هایی که منجر به پیش رفتن شیو دمای بحرانی می‌شوند، الگوهای سلولی دارند. الگوهای سلولی که به سلول‌های بنارد نیز شناخته شده‌اند در مراکز خود دارای جریانی بالارونده و در راستای دیواره‌ها، جریانی پایین‌رونده مطابق شکل ۱ دارند.

۲- سازوکارهای ایجاد‌کننده همرفت در لایه‌های سیال غیرتبخیری

به منظور شرح منشا سلول‌های بنارد در لایه‌های افقی سیال، رایله نخستین تحلیل روش‌مند پایداری جریان همرفتی را ارائه داد که مرتبط با ماهیت تشکیل الگو بر اثر نیروی شناوری است که به عنوان همرفت آزاد یا طبیعی شناخته می‌شود [۹]. بر اساس نظریه‌ی که در قالب عدد بدون بعد رایله (رابطه ۱)، عنوان می‌شود، با ایجاد شیو دمایی در ضخامت لایه مایع، چگالی در سطح بالای مایع بیشتر از توده سیال در زیر می‌شود؛ بنابراین سطح بالاتر به لحظه پتانسیل انرژی ناپایدار شده و حرکت‌های همرفتی برای حداقل شدن انرژی در سطح بالاتر آغاز می‌شوند. در مکانیک سیالات عدد بدون بعد رایله (رابطه ۱) ارتباط بین

جنیش‌های همرفتی در علم مکانیک سیالات پدیده‌ای شناخته شده در ضخامت‌های کم و زیاد از لایه‌های سیال هستند؛ محرک اصلی برای ایجاد این نوع جنبش‌ها در سامانه‌های تک‌جزئی غیرتبخیری، شیوه‌ای دمایی هستند که به واسطه‌ی یک منبع گرمایی یا سرمایشی خارجی به سامانه اعمال می‌شوند. شیوه‌ای دمایی در سیال‌های تک‌جزئی تبخیرشونده از طریق تبخیر سطحی و انتقال گرما در سطح مشترک سیال و محیط اطراف آن، در ضخامت لایه‌ی سیال القا می‌شوند. چنانچه محرک دمایی به اندازه‌ی کافی بزرگ باشد، بسته به ضخامت لایه سیال، سبب برانگیخته‌شدن نیروهای شناوری و کشش سطحی می‌شوند؛ که غلبه این نیروها به عنوان عوامل ناپایدارکننده بر نیروهای پایدارساز گرانرو منجر به آغاز همرفت در سامانه می‌شوند. در سامانه‌های دو جزئی تبخیری و غیرتبخیری نیز، عوامل ناپایدارکننده علاوه بر محرک دمایی، دارای محرک غلظتی نیز هستند و منجر به ایجاد سازوکار ناپایدار مشابهی ناشی از غلظت می‌شود به طوری که جنبش‌های همرفتی ممکن است به صورت ترکیبی از اثرات گرمایی و غلظتی رخ دهند [۱]. شناخت جنبش‌های همرفتی در صنایع بسپاری گوناگونی که مرتبط با ساخت فیلم‌های نازک با ضخامتی در مقیاس میکرومتر هستند، مثل پوشنگ، چسب، چاپ، سلول‌های خورشیدی و غشاها، بسیار مورد توجه قرار گرفته و در حال شناخته شدن هستند [۴-۲]. مرحله‌ی بحرانی در فرایند ساخت این نوع از فیلم‌ها، خشک شدن در اثر تبخیر است تا فیلم بسپاری نهایی با ضخامت یکنواخت و سطحی صاف حاصل شود؛ اما در اغلب موارد خشک شدن منجر به پدیده‌ها و ریخت‌شناصی‌های سطحی می‌شود. بخش بزرگی از طرح‌ها و پدیده‌های سطحی مرتبط با حضور جنبش‌های همرفتی در فیلم‌های نازک مایع هستند. رخداد جنبش‌های همرفتی در فیلم‌های نازک هم می‌تواند موجب نقص محصول نهایی شود، مثل سلول‌های بنارد به عنوان عیوب در صنعت پوشنگ [۵، ۶] و هم به عنوان اثری موجب خودلایه‌شوندگی پوشش‌های چندجزوی شود [۷]. این مرور به تعریف و تاریخچه‌ی همرفت در لایه‌های نازک تک‌جزئی و دو جزئی غیرتبخیری و تبخیری با تمرکز بر محلول‌های بسپاری، سازوکارهای ایجاد‌کننده همرفت و نظریه‌های مطرح شده می‌پردازد.

۲- تعریف همرفت در لایه‌های نازک سیالات تک‌جزئی و پدیده‌ی بنارد

در اصل، حرکت‌های همرفتی گونه‌ای از جابجایی هستند که در میان لایه‌های افقی سیال، هنگامی که سطوح پایین تر نسبت به سطوح بالاتر گرمتر هستند یا بر عکس، به سبب شیو^۱ کشش سطحی یا چگالی وابسته به دما ایجاد می‌شوند. نمود رخداد این نوع جریان‌ها در ضخامت لایه سیال، تشکیل طرح‌های سلولی یا استوانکی^۲ در سطح لایه‌ی سیال است.

¹ Gradient
² Roll

سامانه‌های با سطح آزاد، ناکافی بودن این نظریه را در توصیف ناپایداری‌های همفتی نشان می‌دهد. در سال ۱۹۵۸، پیرسون مدل نظری متغّری برای مسئله‌ی همرفت گرمایی، به منظور توجیه منشا سلول‌های بناره ارائه داد [۱۰]. پیش‌فرض مدل پیرسون وجود لایه‌هایی با چگالی ثابت و تغییرات کشش‌سطحی با دما است. سازوکار اثر نیروهای کشش‌سطحی در مدل پیرسون مشابه رایله است؛ یعنی نیروهای کشش‌سطحی در سطح نسبت به توده سیال بیشتر بوده و در جهتی پیش‌می‌روند که سطح به حداقل انرژی پتانسیل رسیده و پایدار شود. نظریه‌ی پیرسون با اختساب سرعت اتلاف گرمایی ویژه از سطح مشترک (مرز سیال / هوا) به محیط نسبت به تامین گرما برای سطح مشترک از توده سیال (L) و طول موج (a)، فاصله‌ی مرکز تا مرکز سلول‌های همفتی، منجر به اعدادی در حالت حدی مرز رسانا ($L=\infty$) و عایق ($L=0$) می‌شود.

مرز رسانا:

(۲)

مرز عایق:

(۳)

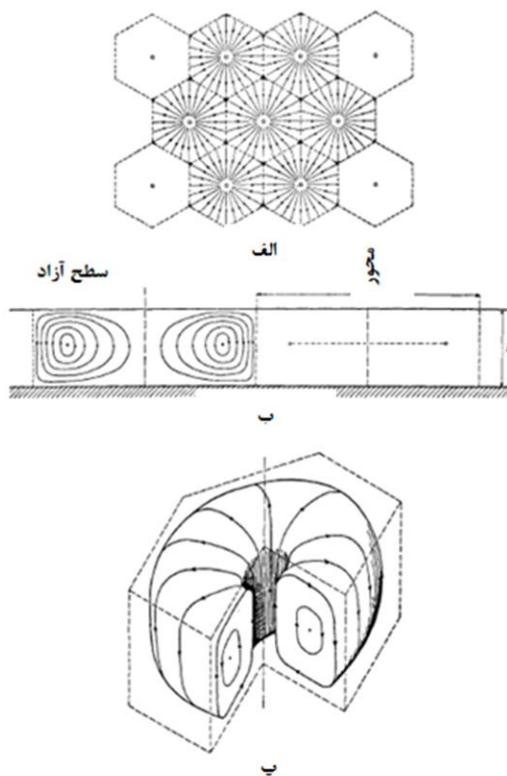
$$B = \frac{8a(\text{acosh}a + L\sinh a)(a - \sinh a \cosh a)}{(a^3 \cosh a - \sinh^2 a)}$$

$$B = \frac{8a(\text{asinh}a + L\cosh a)(a - \sinh a \cosh a)}{(a^3 \sinh a - a^2 \cosh a + 2a \sinh a - \sinh^2 a \cosh a)}$$

نیروهای شناوری و گرانبرو را در داخل سیال مشخص می‌کند؛ نیروهای شناوری، نیروهای ناپایدارکننده برای شروع همرفت و نیروهای گرانبرو، نیروهایی پایدارساز هستند.

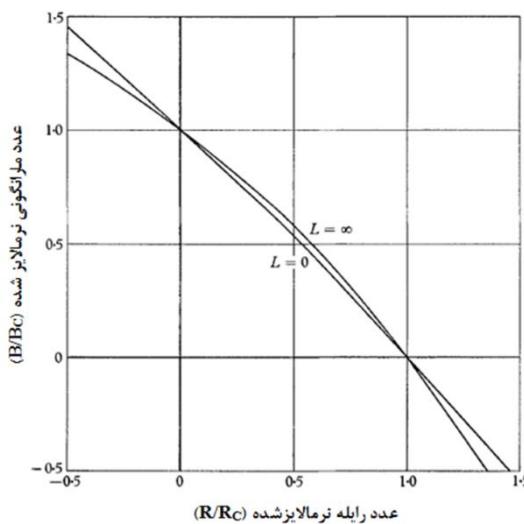
$$Ra = \frac{g\beta\Delta T\delta^4}{va} \quad (1)$$

در عدد بدون بعد مذکور، g شتاب گرانش، β ضریب انبساط گرمایی، ΔT دمایی، δ ضخامت لایه سیال، v گرانروی جنبشی و a نفوذ گرمایی مربوط به سیال هستند. مقدار بحرانی عدد رایله برای شرایط مرزی، شامل مرز رسانای جامد در کف و سطح آزاد در تماس با محیط با استفاده از تحلیل خطی مربوط به مایع گرانبرو، ۱۱۰۸ حاصل شده است. زمانی که عدد رایله برای سیال کمتر از مقدار بحرانی باشد، تسطیح شدن^۱ شیوه‌ی دمایی ایجاد شده در ضخامت لایه سیال در قالب رسانش است و در حالتی فراتر از مقدار بحرانی، انتقال گرما در سیال، در قالب همرفت صورت می‌پذیرد. به رغم کمتر بودن مقادیر اعداد رایله محاسبه شده از حد بحرانی، برای سیالات آزمایشی بنارد در گستردگی ضخامت‌های انتخابی، الگوهای همفتی در سطح سیال پدیدار شدند. عدم انطباق‌پذیری نظریه‌ی رایله با مشاهدات آزمایشگاهی برای سامانه‌هایی

^۱ Leveling

شکل ۱- همرفت سلولی پایه؛ (الف) تصویر از سطح، (ب) تصویر از کنار و (ج) تصویر سه بعدی [۸].

که توسط انرژی گرانزوی تلف می‌شود، وجود دارد. به سبب تفاوتی که در ماهیت نیرو محرك همرفت وجود دارد، جفت شدن این دو سازوکار جالب است. در روش تحلیلی مسئله همرفت، فاصله مرکز تا مرکز سلول‌ها (a) در حالت توسعه یافته به عنوان مشخصه‌ای برای مقایسه مورد استفاده قرار می‌گیرد؛ برای مرز عایق ($L=0$)، این مقدار برای اعداد مارانگونی و رایله به ترتیب $1/993$ و $2/086$ هستند. تفاوت کمی که بین اندازه‌های سلول در هر عدد وجود دارد به عوامل محرك نسبت داده شده‌اند که هر کدام جداگانه عمل می‌کنند. با توجه به منحنی ارائه شده در شکل ۲، در حالت عایق هر دو محرك با ماهیت متفاوت، کشش سطحی و شناوری، سبب هم‌افزایی یکدیگر و پیشبرد همرفت می‌شوند و خط مستقیم با حداقل انحراف مشاهده می‌گردد. از این‌رو، نیلد مطرح کرد جفت‌شدگی دو عامل بسیار شدید است. اما زمانی که سطح آزاد رساناست ($L=\infty$) انحراف خط مستقیم قابل توجه‌تر است و دو سازوکار از شدت جفت‌شدگی کمتری برخوردار هستند. تفاوت در اندازه‌های سلول بزرگ‌تر و مقادیر آنها بر مبنای سازوکار مارانگونی و رایله به ترتیب $3/014$ و $2/682$ می‌باشند. بنابراین بر اساس نظریه نیلد برای مقادیر کوچک از L ، با توجه به تفاوت اندکی که بین اندازه‌ی سلول‌ها بر مبنای هر دو محرك شناوری و کشش سطحی وجود دارد، جفت‌شدگی هر دو محرك محتمل است. گرچه هنوز استدلال پیرسون در برخی از سیالات آزمایشی بنارد به سبب کمتر بودن مقادیر اعداد رایله محاسبه شده از حد بحرانی 110.8 و فراتر بودن مقادیر اعداد مارانگونی از حد بحرانی 80 برقرار است. بنابراین، محتمل است که سلول‌های بنارد عمده توسط کشش سطحی ایجاد شوند. از طرفی، عدد مارانگونی به توان دوم تضخامت و رایله به توان چهارم ضخامت وابسته است؛ بنابراین، محرك کشش سطحی برای لایه‌های نازک سیال پراهمیت‌تر هستند.



شکل ۲- منحنی پایداری $L=0$ و $L=\infty$ به سطوح آزاد عایق و رسانا اشاره دارد و نقاط زیر منحنی، حالت‌های پایدار را نشان می‌دهد [۱۱].

در رابطه‌های ۲ و ۳، B مجموعه‌ای از عوامل فیزیکی تاثیرگذار بر پدیده همرفت گرمایی در لایه‌های نازک از سیال را نشان می‌دهد که شامل σ تغییرات کشش سطحی با دما، ΔT شیو دمایی در راستای عرضی سیال، α ضخامت لایه سیال، γ گرانزوی جنبشی، ρ نفوذ گرمایی^۱ مربوط به سیال و c چگالی لایه سیال هست. مجموعه عوامل فیزیکی B به عدد مارانگونی (رابطه ۴) معروف است؛ این عدد نسبت بین نیروهای کشش سطحی، ناپایدارکننده و نیروهای گرانزو پایدارکننده، را نشان می‌دهد.

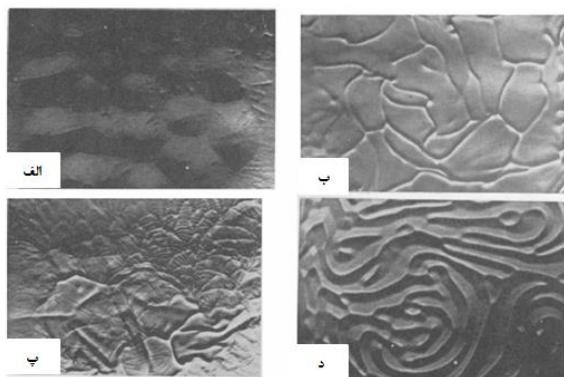
$$B = Ma = \frac{\sigma \Delta T \delta^2}{\rho v a} \quad (4)$$

اتلاف گرمایی ویژه از سطح (L) در نظریه پیرسون، اهمیت مرز عایق و رسانا را در آستانه پایداری یا شروع ناپایداری‌های همرفتی در سامانه نشان می‌دهد. در تحلیل پیرسون می‌توان سامانه‌ی بسته‌ای را فرض کرد که دارای مرز آزاد در سطح است و از مرز کف گرمایی داده می‌شود؛ اگر سامانه بتواند گرمایی ایجاد شده از سطح کف را به سطح آزاد به محیط اطراف منتقل کند، سامانه از آستانه پایداری بیشتری برخوردار بوده و مقدار عدد مارانگونی بحرانی به 80 می‌رسد؛ اما اگر مرز سطحی عایق و امکان انتقال گرمایی وجود نداشته باشد، انرژی تولید شده در اثر منبع گرمایی خارجی در سیال ذخیره شده و برای اتلاف گرمایی در سامانه آشفتگی‌های دمایی ایجاد و با زمان رشد می‌یابند که در نهایت منجر به کاهش آستانه پایداری سامانه و رسیدن مقدار عدد مارانگونی بحرانی به 48 و شروع همرفت می‌شود. بعد از نظریه‌های ارائه شده توسط رایله و پیرسون، نیلد با ادغام هر دو نظریه، دو عامل شناوری و کشش سطحی را در قالب رابطه خطی $R/R_{C+} B/B_C = 1$ موجب پیش‌برد ناپایداری همرفت معرفی کرد [۱۱]. برمنای تحلیل وی زمانیکه عدد مارانگونی بحرانی (C) با افزایش عدد رایله (R) مطابق شکل ۲ کاهش یابد، دو عامل ایجاد کننده ناپایداری یکدیگر را تقویت می‌کنند؛ حال اگر تقویت حداکثری از هر دو نیروی محرك وجود داشته باشد، انتظار می‌رود برای هر مقدار از اعداد رایله و مارانگونی محاسبه شده در هر دو حالت حدی، یعنی مرز عایق ($L=0$) و رسانا ($L=\infty$) نقطه‌ای بر رابطه خطی مذکور قرار گیرد. با توجه به اینکه R متناسب با تفاوت دما بین سطوح کف و سطح است، انرژی بالقوه موجود از اثر شناوری نیز با R متناسب است. بنابراین، برای اندازه‌ی سلولی و الگوی جریان ثابت، R/R_C نسبت انرژی موجود از شناوری به انرژی موردنیاز برای متعادل کردن اتلاف گرانزو در شروع همرفت است. به صورت مشابه نیز، انرژی بالقوه از کشش سطحی نیز متناسب با شیو دمای خطی و بنابراین عدد مارانگونی است؛ بنابراین، B/B_C نسبت انرژی موجود از کشش سطحی به اتلاف گرانزو در شروع همرفت است. بطور کلی در پایداری حدی^۲ (مرز بین پایداری و ناپایداری) تعادلی بین انرژی جنبشی (ناشی از شناوری و کشش سطحی)

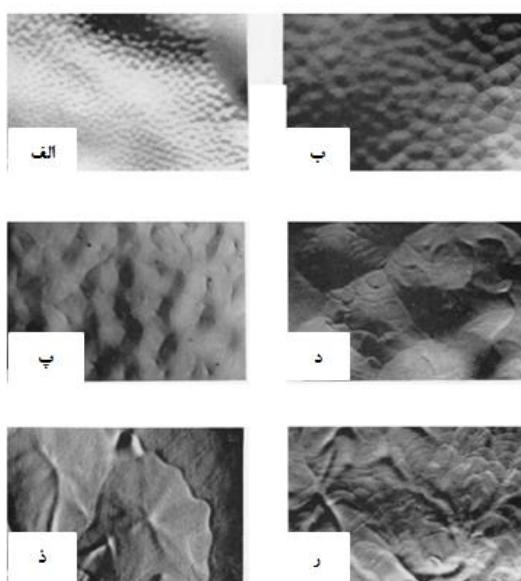
¹ Thermal diffusivity

² Marginal stability

شود. با توجه به مشاهدات برگ و همین طور ضخامت بحرانی تعريف شده برای تعیین نوع سازوکار غالب در سامانه، انتظار می‌رود که همرفت ناشی از شناوری الگویی نواری یا استوانکی نشان دهد که مشخصه‌ی همرفت رایله در نظر گرفته شده است؛ برای لایه‌های نازک با ضخامت کمتر از یک میلی‌متر نیز، طرح سلولی مشخصه‌ی همرفت ناشی از کشش سطحی یا مارانگونی است. تقریباً در تمام پرسی‌های تحلیلی موجود در زمینه‌ی لایه سیال تبخیرشونده، تبخیر صرفاً به عنوان سرمایش از سطح در نظر گرفته شده است یعنی اثر تبخیر توسط اتلاف گرمایی معینی از سطح نسبت به سرعت و گرمای نهان تبخیر اعمال شده در شرایط مرزی متضاد با^۱ در اعداد پیرسون (رابطه‌های ۲ و ۳) نشان داده شده و از نقش خود تبخیر در پایداری همرفتی صرف نظر شده است.



شکل ۳- تصاویر سطحی همرفت تبخیری: (الف) مثال، ضخامت لایه سیال ۲ میلی‌متر، طرح سلولی، (ب) بنزن، ضخامت لایه سیال ۱۰ میلی‌متر، طرح خط‌راهه و (د) کربن تراکلرید، ضخامت لایه سیال ۲ میلی‌متر، طرح استوانکی [۱۲].



شکل ۴- تصاویر سطحی همرفت تبخیری در بنزن: (الف) عمق ۵/۵ میلی‌متر، طرح سلولی، (ب) عمق ۱ میلی‌متر، طرح سلولی، (پ) عمق ۳ میلی‌متر، طرح سلولی، (د) عمق ۴ میلی‌متر، پدیدار شدن طرح خط‌راهه بصورت خطوطی در پس زمینه طرح سلولی، (ذ) عمق ۶ میلی‌متر، طرح نواری و (ر) عمق ۹ میلی‌متر، طرح خط‌راهه [۱۳].

۲-۲- همرفت در لایه‌های نازک تبخیرشونده تک جزئی

همان‌طور که ذکر شد اکثر بررسی‌های مربوط به مسئله نایابداری‌های گرما همرفتی^۱ در لایه‌های سیالات، مرتبط با لایه‌های سیالی هستند که به‌طور پایا از از کف با شیوه دمایی ایستا و بدون تبخیر گرما داده می‌شوند. سازوکارهای شناوری و کشش سطحی به خوبی همرفت ایجاد شده در این نوع سامانه‌ها را توجیه می‌کنند اما توضیح مقاعد کنندۀای برای همرفت در لایه‌های تبخیرشونده، بهویژه آنهایی که از کف سرد می‌شوند، ارائه نمی‌دهند. برای مثال، در آزمایش‌های بنارد برای سیال‌های با فرآیند بالا، هیچ الگوی جریان پایابی به سبب تغییر پیوسته‌ی ضخامت لایه سیال و تأثیر آن بر ساختار جریان مشاهده نشد. در آزمایش‌های برگ و همکاران نیز، در لایه‌های تبخیرشونده سیالات خالصی مثل بنزن، استن، کربن تراکلرید و غیره الگوهای همرفتی قابل توجهی در عمق‌های گوناگون از سیال مشاهده گردید [۸]. به‌طور کلی، در آزمایش‌های آنها همرفت تبخیری معمولاً چهار شکل ساختاری از جریان در ضخامت‌های مختلف ارائه می‌دهد؛ الگوی سلولی، خط‌راهه^۲، استوانکی و نواری. شکل ۳ تصاویر سطحی (الف تا د) از الگوی جریان مربوط به همرفت تبخیری در سیالات گوناگون با ضخامت‌های مختلف ارائه می‌دهد. برگ و همکاران دو عامل ضخامت لایه سیال و حضور مواد غیرتبخیری با اندازه مولکولی بزرگ را در نوع طرح‌های همرفتی ایجاد شده موثر دانستند. برای مثال، الگوهای همرفتی در ضخامت متغیر ۲ تا ۳ میلی‌متر از بنزن تبخیرشونده با حضور مواد مذکور استوانکی است که با حذف آنها الگوهای سلولی در سطح پدیدار می‌شوند. در ضخامت‌های متغیر از لایه بنزن تبخیرشونده نیز طرح‌های سطحی از سلول به الگوی نواری تغییر می‌کند؛ شکل ۴ (الف تا ر) تصاویر طرح‌های سطحی در ضخامت‌های گوناگون از لایه بنزن را نشان می‌دهد؛ که در ضخامت ۵/۰ میلی‌متر طرح سلولی نشان می‌دهد. با افزایش بیشتر ضخامت اندازه سلول‌ها بزرگ‌تر می‌شود تا این که در ۴ میلی‌متر طرح خط‌راهه به صورت خطوطی هاشور خورده در سطح پدیدار شده و در ضخامت‌های ۶ و ۹ میلی‌متر، سلول‌ها به‌طور کامل محو شده و طرح‌های نواری و خط‌راهه‌ها در سطح سیال رویت می‌شوند. آنها همچنین با مقایسه‌ای بین ضخامت بحرانی لایه سیال با استفاده از هر دو نظریه کشش سطحی و شناوری، ضخامت بحرانی برای شروع نایابداری‌های همرفتی مارانگونی و شناوری بر اساس (رابطه ۵) ارائه دادند.

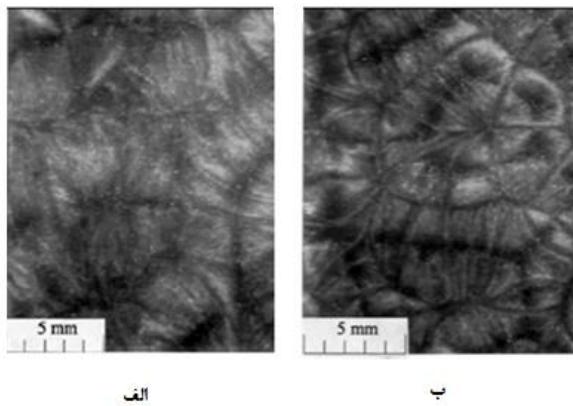
$$\bar{h}_c = \left[\frac{-(d\sigma / dT)}{\rho g \alpha} \cdot \frac{1108}{80} \right]^{1/2} \quad (5)$$

بر اساس \bar{h}_c بدست آمده، برای اکثر سیالات در دمای آزمایشگاه، رابطه ۵ منجر به مقادیر \bar{h}_c با مرتبه‌ای در حد یک سانتی‌متر می‌شود. آنگاه برای ضخامت‌هایی کمتر از \bar{h}_c به سبب آنکه نسبت سطح به حجم زیاد است، انتظار می‌رود که نیروهای کشش سطحی نسبت به نیروهای شناوری در ایجاد نایابداری همرفتی موثرتر عمل کنند. برای مقادیر \bar{h}_c کوچک‌تر از یک میلی‌متر، شروع جنبش‌های سلولی به‌طور قطع می‌تواند به کشش سطحی نسبت داده

¹ Thermo- convection instability

² Rib

ارائه می‌دهند (شکل ۵)، از این‌رو، محرک تبخیری را بیشتر از محرک اختلاف دما در لایه‌های این نوع از سیال مهم دانسته‌اند.



شکل ۵- طرح همزیستی استوانک و سلول مانند در لایه‌های $R-113$ با ضخامت ۱ میلی‌متر با دمای (الف) ۲۳ و (ب) ۱۱/۸ درجه سلسیوس از کف گرم و سرد می‌شوند [۱۶].

بر اساس نتایج حاصل از آزمایش‌ها، ژانگ و همکارانش تبخیر را به عنوان محرک دیگر در القا و تقویت همرفت در لایه‌های مایع تبخیرشونده مطرح و عدد مارانگونی را با در نظر گرفتن، Δh_v گرمای نهان تبخیر و V سرعت تبخیر اصلاح کردند (رابطه ۶).

$$Ma^* = \frac{\sigma \Delta T \delta}{\mu a} + \frac{\sigma V \Delta h_v \delta^2}{k v k} \quad (6)$$

عدد بدون بعد مطرح شده توسط ژانگ و همکارانش، که ترکیبی از هر دو محرک تبخیر و تفاوت دما است، به خوبی سازوکار و نیروی محرک برای ایجاد و تقویت همرفتها در لایه‌های سیال تبخیرشونده را توصیف می‌کند. بسته‌هورن نیز عدد مارانگونی (رابطه ۷) با صرف در نظر گرفتن اثر تبخیر در سامانه ارائه داد و شرایط بحرانی برای ناپایداری‌های مارانگونی-بنارد القا شده در اثر تبخیر را با استفاده از تحلیل پایداری خطی تخمین و مقادیر آن را بیشتر از 80° به دست آورد [۱۷]. با توجه به عدد ژانگ و بسته‌هورن که هر دو دارای مشخصه‌های تبخیر (سرعت تبخیر و گرمای نهان تبخیر) هستند، می‌توان گفت عدد بسته‌هورن برای سامانه‌هایی کاربرد دارد که شیوه‌های دمایی در آن صرفاً در اثر تبخیر القا شده‌اند و هیچ منبع گرمایی خارجی در سامانه برای ایجاد شیوه‌های دمایی اعمال نشده است. در اصل، عدد ژانگ برای سامانه‌های تبخیری کاربرد دارند که از کف سرد یا گرم می‌شوند.

$$Ma = \frac{\sigma \delta^2 V \Delta h_v}{\rho a v k} \quad (7)$$

گرچه، پیشتر جو و همکارانش [۱۳] تحلیل پایداری خطی برای سیالات تبخیرشونده ارائه و نشان داده بودند که لگدنزی بخار^۱ توسط ناپایداری‌های تبخیری القا می‌شوند. بر اساس تحلیل آنها، تغییر شکل لایه‌های فرار با لگدنزی بخار، ناپایداری و آشوب در اثر مارانگونی گرمایی است. پدیده‌ی لگدنزی بخار، ناپایداری و آشوب در اثر خروج سریع مولکول‌ها از سطح مایع است که آن را می‌توان ناشی از یک واکنش مکانیکی در سطح، در اثر تبخیر سریع دانست. پالمر به تحلیل ریاضی مسئله لگدنزی بخار در فشارهای کم بر سطح مایع پرداخت [۱۴]. نظر او این بود که به علت قانون بقای جرم، تغییر در چگالی سیال به هنگام تبخیر موجب یک ناپیوستگی در سرعت سیال (عمود بر فصل مشترک سیال/هوای) و سرعت انتقال تکانه^۲ می‌شود، از سویی قانون بقای تکانه نیز برقرار است. از این‌رو ناپیوستگی در سرعت، موجب اعمال یک نیروی رو به پائین عمود بر فصل مشترک می‌شود که به لگدنزی بخار تعبیر می‌گردد. توان یا میزان لگدنزی با افزایش سرعت تبخیر و همچنین با افزایش نسبت چگالی ماده در دو فاز بخار و مایع، افزایش می‌یابد. از آن‌رو که چگالی فاز گاز به صورت خطی متناسب با فشار است، مقدار و اهمیت نیروی لگدنزی بخار به صورت خطی با کاهش فشار محیط زیاد می‌شود. لگدنزی بخار منجر به ایجاد فرورفتگی در سطح می‌شود. هر نوع آشفتگی، مثلاً به صورت یک افزایش دمای سطحی در یک نقطه موجب افزایش فشار تبخیر و در نتیجه موجب افزایش لگدنزی بخار می‌شود. در سال ۱۹۹۶، ژانگ و همکارانش نتایج آزمایشگاهی ارائه دادند که به اثرات تبخیر بر همرفت مارانگونی گرمایی در لایه نازک سیال، چه از کف سرد و چه گرم می‌پردازد [۱۵]. بر اساس نظریه‌های رایله و مارانگونی زمانی که مقدار اختلاف دما مثبت است، یعنی سامانه از کف گرم شود، انتظار رخداد همرفت وجود دارد؛ بنابراین با منفی شدن مقدار شیو دمایی به سبب سرد شدن سامانه از کف، انتظار می‌رود همرفتهای مارانگونی و رایله رخ ندهند اما آزمایش‌های صورت گرفته توسط ژانگ و همکارانش روی لایه‌های تبخیرشونده اتالن و ۱۱/۲-تری‌کلروتری‌فلورواتان (R-113)، مشاهداتی متفاوت با نظریه‌های مطرح شده ارائه دادند. در لایه‌های تبخیرشونده مورد بررسی آنها، اختلاف دما در لایه سیال بر اساس سرمایش یا گرمایش، می‌تواند مقادیر مثبت، منفی و حتی صفر اختیار کند و همچنان ناپایداری‌های همرفتی در سامانه برقرار باشند. نکته مورد توجه دیگری در مورد آزمایش‌های ژانگ و همکارانش سرعت تبخیر است؛ R-113 سرعت تبخیری ده برابر بزرگ‌تر از اتالن دارد، بنابراین ناپایداری‌های همرفتی در لایه‌های تبخیرشونده این مایع ساده‌تر القا شده و جنبش‌های همرفتی سریع‌تر هستند. در این نوع سیال مدامای که اختلاف دما مثبت است، چه لایه‌ها از زیر گرم چه سرد شوند، لایه‌های R-113 با ضخامت یک میلی‌متر، همیشه مشخصات همرفت ناشی از اختلاف چگالی، یعنی طرح استوانکی یا همزیستی از استوانک و سلول،

¹ Vapor recoil
² Momentum

بنابراین شیو دمایی کمتری ایجاد شده و سرعت تبخیر نیز به سبب کم بودن شیو دمایی کاهش می‌یابد. در واقع عدد مارانگونی با افزایش نسبت رسانش گرمایی سیال به رسانش گرمایی زیرآیند افزایش می‌یابد [۲۰]؛ یعنی رسانش گرمایی کم زیرآیند می‌تواند موجب پایداری بیشتر سامانه شود. شکل ۶ تاثیر جنس زیرآیند بر سرعت تبخیر سیالات گوناگون را نشان می‌دهد.

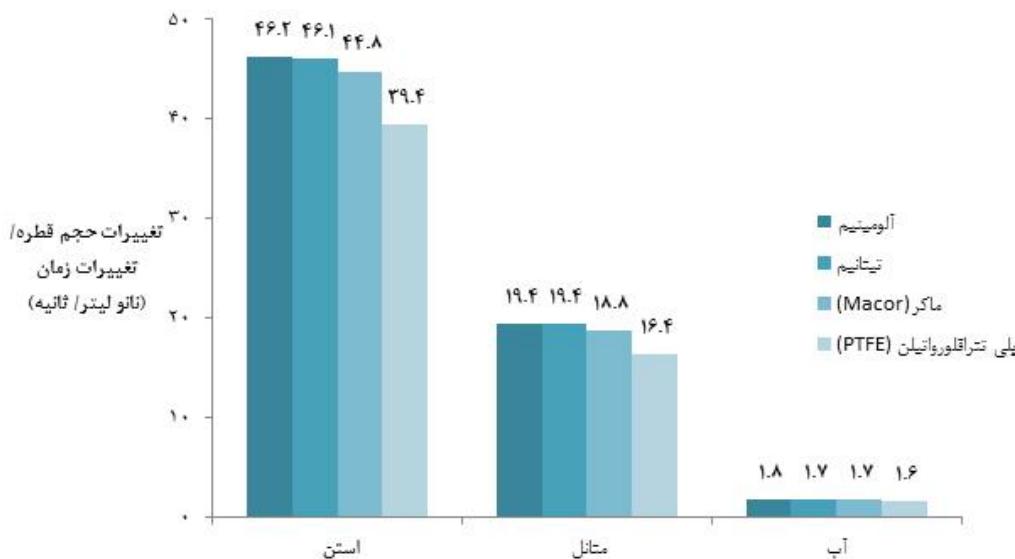
۳- همرفت در لایه‌های سیال دو جزیی/چند جزئی

پدیده‌ی همرفت ناشی از سازوکارهای شناوری و یا کشش‌سطحی در سامانه‌های دو یا چند جزئی سردشونده علاوه بر محرك دمایی که موجب شیوه‌های دمایی در لایه‌ی سیال می‌شوند، دارای محرك غلظتی نیز هستند؛ یعنی اجزای تشکیل دهنده سامانه بسته به سرعت تبخیر متفاوت اجزا موجب ایجاد شیوه‌های غلظتی می‌شوند. سازوکار اثر شیوه‌های غلظتی در سامانه‌های دو یا چند جزئی سردشونده مشابه شیوه‌های دمایی است؛ به این صورت که تغییراتی را در چگالی یا کشش‌سطحی اجزا القا و منجر به ایجاد جریانی از نواحی با چگالی یا کشش‌سطحی کمتر به بیشتر برای رسیدن به پایداری انرژی در سطح می‌کند. در این نوع لایه‌های نازک دو یا چند جزئی، اهمیت شیو غلظتی و تاثیر آن بر سازوکار همرفت مارانگونی در قالب عدد بدون بعد مارانگونی غلظتی (رابطه ۸) لحاظ شده است.

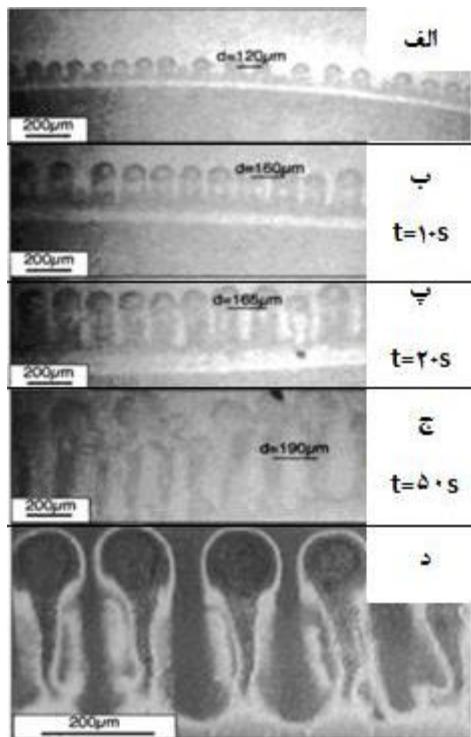
$$Ma_c = \frac{\sigma_c \Delta C \delta}{\rho v D} \quad (8)$$

۲-۳- تاثیر رسانش گرمایی زیرآیند بر ناپایداری همرفتی مارانگونی

در تحلیل صورت گرفته توسط پرسون، مز رسانا و عایق در سطح آزاد سیال که در تماس با هوا و یا گاز محیط است، تعریف شده است و صحبتی از تاثیر رسانا و عایق بودن زیرآیند بر ناپایداری مارانگونی به میان نیامده است. در عمل، عایق و رسانا بودن زیرآیند می‌تواند بر آستانه‌ی ناپایداری همرفتی اثر گذار باشد. به طور مثال دان و کاوه پور بر سرعت تبخیر قطرات و به تبع آن ناپایداری همرفتی اثر گذارد [۱۹-۲۰]؛ با توجه به اینکه سرمایش تبخیری منجر به سردترشدن سطح آزاد نسبت به زیرآیند می‌شود، می‌توان گفت که در زیرآیندی از جنس الومینیم با رسانش گرمایی نسبتاً خوب، دمای زیرآیند اغلب ثابت مانده و برابر با دمای محیط است؛ به سبب اینکه با ایجاد نوسان دمایی در سیال و مز مشترک سیال و زیرآیند به دلیل داشتن رسانش گرمایی نسبتاً خوب می‌تواند گرما مورد نیاز برای جبران و از بین بردن نوسان دمایی را از محیط اطراف تامین کند و ضرورتاً تمام سرمایش تبخیری در داخل مایع رخ داده و منجر به تبخیر سریع تر سیال می‌شود، بنابراین شیوه‌های دمایی ایجاد شده در سیال به واسطه‌ی تبخیر و تغییر پیوسته‌ی دما بیشتر است. در حالی که در زیرآیندی از جنس پلی‌تری‌فلورواتیلن (PTFE) با رسانش گرمایی نسبتاً ضعیف، نوسان دمایی ایجاد شده بواسطه‌ی سرمایش تبخیری در داخل سیال و مز مشترک زیرآیند و سیال نیز ایجاد می‌شود، اما چون زیرآیند قادر به تامین گرما از محیط اطراف برای جبران و حذف نوسان‌های دمایی نیست، دما در مز مشترک زیرآیند و سیال متناسب با نوسان دمایی در داخل سیال تغییر می‌کند،



شکل ۶- تاثیر جنس زیرآیند و نوع سیال بر سرعت تبخیر [۱۹].



شکل ۷- الگوهای اثر انگشتی در محلول غلیظ نترات نقره در زمان‌های متفاوت در طول فرآیند پخش شدن قطره، (الف) لحظه‌ی شروع آزمایش، (ب، ج و د) به ترتیب ۱۰، ۲۰ و ۵۰ ثانیه پس از شروع و (ر) پس از فرآیند تبخیر [۲۷].

۳-۱- همرفت پرشار، انگشت- نمکی در سامانه‌های دو جزئی جامد شونده

انواع دیگری از همرفت در سامانه‌های چندجزئی سرد شونده در اقیانوس‌شناسی، مقیاسی بسیار بزرگ‌تر از لایه‌های نازک سیالات مورد بحث پیشین، مشاهده و گزارش شده‌اند؛ همرفت پرشاری، انگشت-نمکی^۲ و نفوذ دوگانه^۳. به سبب قیاس قابل توجهی که بین تشکیل دودکش‌ها (متناظر با همرفت پرشاری) در بین قالب‌گیری آلیاژ‌های فلزی (شکل ۸) وجود دارد، این نوع از همرفت‌ها در مقیاسی کوچک‌تر در آزمایشگاه‌ها حین سردسازی محلول‌های کلرید آمونیم آبی مورده، به منظور تبیین علل ایجاد این نوع از همرفت‌ها و ارائه‌ی مدلی تحلیلی مورد بررسی قرار گرفته‌اند. فرآیند سردسازی محلول‌های کلرید آمونیم آبی از کف، سامانه‌ای سه‌لایه تشکیل می‌دهند که عبارتند از: لایه‌ای جامد در کف، لایه‌ای لوشی^۴ که ترکیبی از جامد و مایع است و لایه‌ای مایع در سطح [۲۸]. اگر جامدسازی از سطح صورت گیرد توالی لایه‌ها به صورت لایه‌ای جامد در سطح، لایه لوشی در میانه و لایه‌ی مایع در کف هستند. در طول فرآیند جامدسازی سامانه‌های کلرید آمونیم آبی، همرفت‌های مذکور با مشخصه‌های پایداری متفاوت به‌طور همزمان یا متواالی رخ می‌دهند [۳۱].

در عدد مذکور، شیوه کشش‌سطحی ناشی از تفاوت غلظت(σ_c)، شیوه غلظت بین سطوح سطح و کف سیال (ΔC) و ضرب نفوذ جرمی سیال (D) سه پارامتر متفاوت با عدد مارانگونی گرمایی هستند؛ عوامل دیگر، یعنی ضخامت لایه سیال (h)، چگالی (ρ) و گرانزوی جنبشی (η) در هر دو عدد مارانگونی با منشاها متفاوت گرمایی و غلظتی یکسان هستند. سامانه‌های دو یا چندجزئی سردشونده در صنایع مبتنی بر ساخت فیلم‌های نازک با مقیاس میکرومتر از اهمیت کاربردی به سرزایی برخوردار هستند و رخداد پدیده همرفت و اثر آن بر فیلم نهایی مورد تمرکز بسیاری از پژوهش‌های مربوطه هستند. به طور مثال، کلنر و همکارانش تصاویری از ساختارهای همرفتی سلولی حین تبخیر محلول آب/ سیکلوهگران مشاهده و گزارش کردند [۲۱]. نارایان و همکارانش به لحاظ تحلیلی نشان دادند که رخداد همرفت مارانگونی ناشی از غلظت و الگوهای منتج از آن می‌تواند به جهت گرمایش سامانه بستگی داشته باشد [۲۲]. ژانگ و همکارانش با بررسی ناپایداری‌های مارانگونی در محلوطهای دو جزئی آب/ اتانول و آب/ نمک (سامانه‌ای جامدشونده) الگوهای متفاوتی از همرفت را تغییر کسر حجمی اجزا در هر دو نوع محلوط مشاهده و گزارش کردند [۲۳ و ۲۴]. هریس و لوئیس با تغییر کسر حجمی اولیه مربوط به کلؤیدها، الگوهای متنوعی را در فیلم‌های تبخیرشونده کلؤیدی ایجاد کردند [۲۵]. شوازنبرگر و همکارانش نیز الگوهای متفاوت همروفتی و برهم‌کنش‌های بین آنها را عامل پیچیدگی و ناپایداری رفتار سامانه‌های دو جزئی عنوان کردند [۲۶]. پیلنی و همکارانش اثر همروفت مارانگونی را در محلوطهایی از نانوبلورهای متفاوت با اندازه‌ها و شکل‌های گوناگون در حلال‌هایی با سرعت تبخیر متفاوت مورد بررسی قرار دادند و الگوهایی از حلقه و شش‌ضلعی در سطح محلوطها آزمایشی گزارش دادند؛ بر اساس مشاهدات آنها هر شش نانوبلور مورد مطالعه، یعنی مس، نقره، هیدروکسید آهن، کبات، کادمیم سولفید و نقره سولفید با اندازه‌ها و شکل‌ها و خواص متفاوت نقشی در تشکیل حلقه‌ها ایفا نمی‌کنند بلکه سرعت تبخیر حلال عامل تعیین‌کننده در بوجود دن آوردن این نوع حلقه‌ها است. آنها هم‌چنین با تهیه‌ی محلول غلیظی از نانوکریستال‌های نقره، الگوهای ویژه‌ای از تغییرات ناپایداری را در سطح مقطع نمونه، در طول خط ترکنندگی قطره‌ای از محلول بر سطح زیرآیندی از جنس شیشه، به نام اثر انگشتی^۱ گزارش کردند. ایجاد الگوهای اثر انگشتی به هم‌زمانی تشکیل شیوه‌های دمایی و غلظتی به سبب تبخیر حلال نسبت داده شده است. شکل ۷ تغییرات الگوهای اثر انگشتی را در طول زمان با تبخیر حلال نشان می‌دهند [۲۷].

¹ Fingering

² Salt- Finger

³ Double- diffusive

⁴ Mush

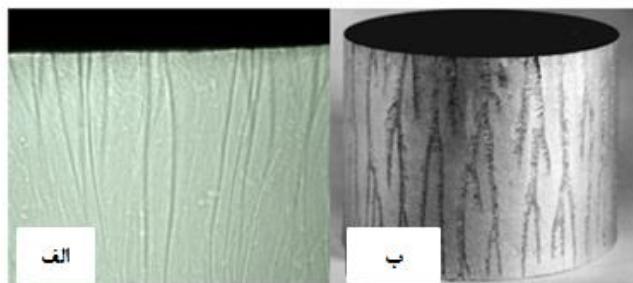
مقاله

انگشت-نمکی در نتیجه‌ی این نوع از ناپایداری رخ می‌دهد و در لایه مرزی غلظتی محدود شده است. در این نوع ناپایداری کسر جامد آشته نمی‌شود. ناپایداری لایه لوشی مرتبط با آشفتگی کسر جامد است. مشاهدات نشان می‌دهد که این نوع از ناپایداری موجب تشکیل پرشار می‌شود [۳۴]. زمانی که لایه لوشی ضخیم‌تر شود با ادامه‌ی جامدسازی، موقعیت بحرانی در لوش فراتر می‌رود و ستون‌هایی در قالب کانال‌هایی عمودی در لوش پدیدار می‌گردد و پرشارهایی از سیال سبک‌تر به بالادست در کانال‌ها به داخل مایع جریان می‌یابند. با ادامه‌ی جامدسازی از سطح کف، تعداد اثر انگشت‌ها به پرشارهایی تنومند با تعداد کمتر تقلیل می‌یابند. با گذشت زمان کانال‌ها عمیق‌تر شده، در حالی که قدرت پرشارها افزایش یافته و حرکت آنها به سمت بالا می‌شود [۳۵].

۲-۳- همرفت در سامانه‌های پوششی

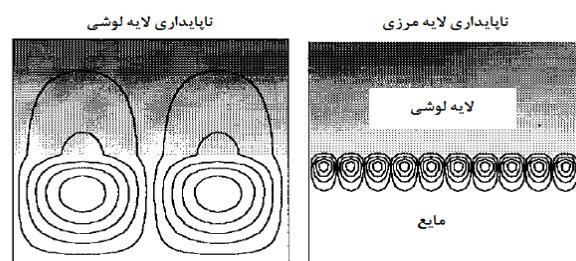
تشکیل فیلم به‌واسطه خشکشدن محلول‌های بسپاری، فرآیندی است که به صورت گسترده در آزمایشگاه‌ها و کاربردهای صنعتی بسیاری مثل پوشش‌دهی مورد استفاده قرار می‌گیرد. به‌طور مثال، سامانه‌های پوششی دو یا چند لایه به منظور حفظ زیرآیند از خوردگی و داشتن ظاهری مطلوب بسیار مورد توجه قرار گرفته‌اند؛ ویژگی مهم این نوع سامانه‌های پوششی، اعمال یک پوشش مجزا بجای دو لایه گستته و متمایز است که سبب ارائه چسبندگی بین لایه‌ای و دوام بالاتر پوشش می‌شود. لایه‌ای شدن این نوع سامانه‌های پوششی به سبب اثری از پدیده‌ی همرفت، ناشی از تغییرات کشش‌سطحی، عنوان شده‌اند [۷].

در پوشنگ‌های پایه حلالی نیز که معمولاً از چندین جزء متفاوت تشکیل شده‌اند و هر جزء اثرات مختص خود را بر پوشش نهایی می‌گذارد، جریان‌های همرفتی یا سلول‌های بناره به عنوان نقص سطحی در پوشش نهایی گزارش شده‌اند. همین‌طور در این صنعت بی‌قاعدگی‌های سطح پوشنگ با طول موج بین 0.1 تا 0.01 میلی‌متر و دامنه‌هایی بین 0.5 تا 5 میکرون در رده نقص پوست پرتقالی گزارش می‌شود که در نتیجه حضور همرفت غلظتی در سامانه پوششی ایجاد شده است [۳۶]. بنابراین، با شناخت منشا ایجاد نقص‌ها در سامانه‌های پوششی می‌توان عوامل کنترلی و موثر را در جهت حداقل کردن نقص‌ها و عیوب پوشش نهایی تعیین کرد. در بسیاری موارد تبخیر منجر به ایجاد طرح‌های شیارگون بر سطح فیلم‌های نهایی می‌شود. دو مدل اصلی برای توجیه ایجاد شیارهای سطحی در محلول‌های بسپاری ارائه شده است؛ در مدل نخست، ناپایداری‌های مکانیکی، پیشنهاد می‌شود که با خشکشدن محلول، شیوه‌ای غلظتی نزدیک سطح مشترک محلول/بخار تشکیل می‌شود. بسته به خواص شیمی فیزیکی چنین سامانه‌هایی، لایه خارجی با غلظت بالاتری از ماده‌ی بسپاری می‌تواند دست‌خوش انتقال شیشه‌ای شود. دمای انتقال شیشه‌ای محلول نسبت به بسپار خالص کمتر است. بنابراین در صورت ایجاد ناپایداری سطحی، پوسته به صورت کشسان عمل می‌کند. اما زمانی که غلظت بسپار زیاد شود دمای انتقال شیشه‌ای بسپار افزایش یافته و به مقدار حقیقی بسپار خالص نزدیک می‌شود؛ این امر سبب باقی



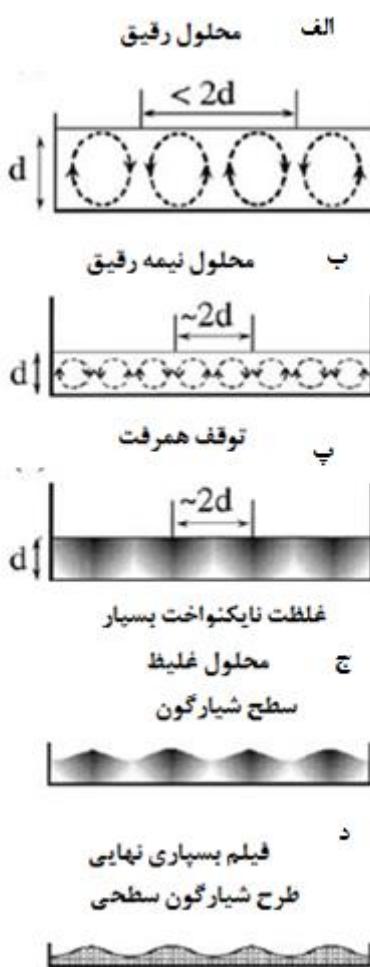
شکل ۱- ایجاد اشکالی ستونی در حین جامدسازی (الف) محلول آمونیم کلرید آبی و (ب) قطعه نهایی از آلیاژی فلزی که متناظر با همرفت پرشاری هستند [۲۹-۳۰].

همرفت‌های انگشت-نمکی که در بالای لوش تشکیل می‌شوند ناشی از رشد کریستال‌ها و دفع سیال غنی از آب در مراحل اولیه‌ی سردسازی هستند؛ در اصل به سبب تغییراتی که در چگالی اجزا به سبب شیوه‌ای غلظتی و گرمایی پدید می‌آید، اثر انگشت‌های غنی از آب در مجاورت اثر انگشت‌های غنی از نمک پایین‌روندۀ مشاهده می‌شوند. همرفت پرشاری که به‌طور مستقیم در داخل لوش ایجاد می‌شوند، چرخشی با مقیاس بزرگ از توده سیال هستند که توسط زوال همرفت اثر انگشتی-نمکی القا می‌شوند؛ در اصل، پرشارها ستونی از سیال هستند که در سیال دیگر جریان دارند. با شکست پرشارها در سطح بالاتر محلول‌ها، لایه‌های نفوذ-دوگانه افقی حاصل می‌شوند. همرفت نفوذ-دوگانه توسط دوشیو چگالی توصیف می‌شود که هر کدام سرعت‌های متفاوتی از نفوذ را دارا هستند. در جامدسازی محلول‌های کلرید آمونیم آبی، تغییرات چگالی به‌واسطه‌ی شیو در اجزای سیال و یا تفاوت‌هایی در دما (به‌واسطه انبساط گرمایی) ایجاد می‌شوند. شیوه‌ای گرمایی و غلظتی، اغلب موجب نفوذ در سامانه با زمان می‌شوند که توانایی بالقوه آنها را برای ایجاد همرفت می‌کاهد و برای ادامه همرفت نیاز به شیوه‌ایی در نواحی دیگر از جریان دارد [۳۲]. به لحاظ مدلی تحلیلی و ستر در سال ۱۹۹۲، دو نوع سازوکار شامل ناپایداری که سبب بوجود آمدن دودکش‌ها در حین سردسازی محلول‌های کلرید آمونیم آبی می‌شوند، عنوان کرد (شکل ۹؛ ناپایداری لایه مرزی و ناپایداری لایه لوشی [۳۳]).



شکل ۹- ناپایداری در لایه‌ی لوشی و لایه مرزی حین فرآیند جامدسازی محلول کلرید آمونیم آبی [۳۴].

در ناپایداری لایه مرزی، سیال در داخل شکاف‌های لایه لوشی ساکن است و ناپایداری در بالای لایه لوشی در ناحیه مایع رخ می‌دهد. همرفت



شکل ۱۰ - طرحی از تغییر جریان همرفتی در عمق لایه محلول بسپاری با گذشت زمان؛ (الف) محلول رقیق و برقراری همرفت پایدار به واسطهٔ تبخیر حلال، (ب) افزایش غلظت بسپار به واسطهٔ تبخیر با گذشت زمان، (پ) سنگین بودن بسپار به سبب چگالی بیشتر نسبت به حلال و ایجاد جریان پایین رونده از بسپار، (ج) افزایش غلظت بسپار در نواحی سرد و ایجاد نایکنواختی در سطح فیلم و (د) فیلم نهایی تشکیل شده با سطحی شیارگون [۳۹].

برهانشکو و همکارانش با استفاده از روش غوطه‌وری و سرد کردن سریع فیلم‌های بدست آمده با نیتروژن مایع به بررسی الگوهای سطحی در محلول‌های بسپاری پلی‌متیل‌متاکریلات، پلی‌کربنات و پلی‌استایرن در حلال‌های کلروفرم و کلرومنтан پرداخته‌اند [۴۰]. آنها سه الگوی اصلی محتمل برای ایجاد طرح‌های سطحی را مبنای کار خود قرار دادند؛ نخست، رطوبت جوی تواند منجر به تشکیل فیلم‌هایی با آرایش شش ضلعی منظم شود. دوم، فرآیندهای انتقال گرما و جرم در فیلم‌های بسپاری نازک؛ شیوه‌ای دمایی و غلظتی فوق بحرانی عمود بر سطح و تغییرات دوره‌ای ایجاد شده در کشش سطحی می‌توانند مسئول تشکیل ساختارهای سطحی شوند. که این شیوه‌ها در حالت نایکیدار فوق بحرانی، سبب نایکیداری مارانگونی می‌شوند. سوم، در فیلم تبخیر شونده، پرشارهایی از سیال غنی از حلال، افت موضعی در کشش سطحی القا می‌کنند و نیروهای سطحی تمايل به تقویت پرشار دارند. بر اساس نتایج حاصل از کار آنها نوع بسپار، حلال و زیرآیند تاثیری بر اندازه

ماندن نایکیداری سطحی در سطح می‌شود [۳۵]. همچنین پوسته غلظت شیشه‌ای تشکیل شده در سطح به عنوان مانع برای تبخیر حلال عمل می‌کند و حلال به واسطهٔ نفوذ از پوستهٔ شیشه‌ای به تبخیر ادامه داده و در نهایت فیلم خمیده و سطح شیارگون می‌شود. براساس مدل دوم، الگوهای شیاردار سطحی نتیجهٔ تغییر جنبش‌های همرفتی بنارد-مارانگونی هستند که منجر به الگوهای سطحی می‌شوند. با توجه به دو جزئی بودن فیلم‌های محلولی تبخیرشونده و ضخامت‌های اعمال شده کمتر از یک میلی‌متر از آنها در صنایع پوششی، دو سازوکار اصلی، یعنی هم‌رفت گرمایی مارانگونی و هم‌رفت غلطی مارانگونی برای توجیه الگوهای سطحی مورد توجه هستند. به طور مثال، ساکورایی و همکارانش به توصیف سازوکار نقش دهندهٔ شیارهای سطحی و کنترل اندازهٔ آنها توسط کنترل سرعت تبخیر پرداخته‌اند [۳۸]. نمونه‌ی مورد استفاده‌ی آنها هم‌بسپار^۱ تصادفی استایرن-بوتادی‌ان حل شده در تولوئن با ضخامت اولیه ۳/۲ میلی‌متر در ظرف دور شیشه‌ای قالب‌گیری می‌شود. چگالی اجزا مهم‌ترین عامل فیزیکی در بررسی آنها است که مقادیر آن برای هم‌بسپار و حلال به ترتیب 0.96 g/cm^3 و 0.87 g/cm^3 است. براساس نتایج حاصل، همرفت در قالب‌گیری محلول نه تنها به شناوری بلکه به کشش سطحی نیز نسبت داده می‌شود. در نمونه‌ها، سطح سیال چین می‌خورد. بدین صورت که جریان‌های بالارونده، نواحی گرم در سطح آزاد سیال ایجاد می‌کنند در نتیجه به سبب واستگی کشش سطحی به دما، نواحی سردتر به سمت ناحیه گرم کشیده شده و این ناحیه را محدب می‌کند و نواحی اطراف (سردتر) فرورفته می‌شوند. با تبخیر حلال، گرمای نهان تبخیر از سطح تامین می‌شود که سبب کاهش دمای سطح می‌شود. در نواحی سردتر با کاهش دما، غلظت بسپار افزایش یافته و به دلیل سنگینی (بیشتر بودن چگالی بسپار نسبت به چگالی حلال) جریان پایین‌رونده‌ای ایجاد می‌شود که به واسطهٔ آن همرفت پایدار برقرار می‌شود. ایجاد چنین جریان‌های بالا و پایین‌رونده (همرفت) با تبخیر حلال و افزایش کسر وزنی جزء غیرتبخیری در ضخامت لایه محلول باقی می‌ماند، حتی اگر همرفت متوقف شود (شکل ۱۰). غلظت نایکنواخت بسپار باقی‌مانده در سطح آزاد منجر به ایجاد شیارهای سطحی می‌شود؛ به طوری که غلظت زیاد، سطح را محدب و غلظت کم آن را مقعر می‌سازد.

^۱ Copolymer

مقاله

پایداری سطح، نیروهای سطحی معمولاً تمايل دارند پرشار مذکور را تقویت کنند [۴۲]. نکته‌ی جالبی دیگری که برماشنکو و همکارانش در آزمایش‌های خود به آن اشاره کردند، توصیف سطح آزاد جاذب و دافع در نمونه‌های مورد بررسی و تاثیر این نوع سطوح بر ایجاد ناپایداری سطحی بود. بر اساس گزارش آنها پلی‌استایرن در حلال‌های کلردار دارای سطح آزاد جاذب و در حلال تولوئن دارای سطحی دافع است. در محلول پلی‌استایرن / تولوئن، بسپار کشش‌سطحی محلول را در مقایسه با تولوئن خالص افزایش می‌دهد و این امر موجب می‌شود با تبخیر تولوئن، بسپار به داخل توده محلول کشیده شود؛ اما در محلول‌های پلی‌استایرن و حلال‌های کلردار، بسپار کشش‌سطحی مربوط به سطح مشترک هوا/ محلول را می‌کاهد و تبخیر حلال منجره ایجاد لایه‌ای غنی از بسپار در سطح آزاد می‌شود، در نتیجه رخداد ناپایداری مارانگونی غلطی محتمل می‌شود. سرانجام فیلم‌های ناشی از پوشرنگ را با ضخامت‌های یکنواخت در گستره ۱۵۰ تا ۸۲۰ میکرومتر مورد بررسی قرار دادند تا تاثیر ضخامت متغیر بر شروع جریان‌های ناشی از کشش‌سطحی در لایه‌های پوشرنگ در حال پخت را بدست آورند [۳]. سامانه‌ی آزمایشی آنها رزین ترکیبی حاوی ۷۰٪ وزنی ملامین بوتیله فرمالدئید و ۳۰٪ وزنی آکریلیک گرماساخت کننده عاملی هیدروکسیل $\text{H}_2\text{N}-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{OH}$ که در بوتائل حل شده است. در شروع آزمایش (t=0)، تمام سطح پوشرنگ‌ها صاف ظاهر می‌شوند ولی با گذشت چند ثانیه پس از شروع گرمایش، ساختارهای سلولی بر سطح تمام فیلم‌ها مشاهده می‌شوند. انداره‌ی سلول‌ها با افزایش ضخامت فیلم زیاد می‌شوند. به منظور تعیین سازوکار ایجاد کننده همرفت در سامانه آزمایشی، تغییرات دمای افقی که توسط تبخیر حاصل می‌شوند (برای حلال خالص) یک درجه سانتی‌گراد گزارش شده است که این مقدار برای ایجاد شیوه‌های کشش‌سطحی یا چگالی قابل توجه بسیار کوچک است. همین‌طور براساس مشاهدات سطح پوشرنگ با دوربین زیرقمرز این موضوع تصدیق شده است که شیوه‌های دمایی سطحی قابل ملاحظه‌ای وجود ندارند. بنابراین بسیار محتمل است که جریان‌های ایجاد شده به واسطه‌ی شیوه کشش‌سطحی به سبب تغییرات در غلظت حلال در طول خشکشدن پوشرنگ است [۴۳]. اگر تغییر متنابع در غلظت حلال در دو ناحیه‌ی متفاوت از سطح پوشرنگ وجود داشته باشد، کشش‌سطحی در مکانی با غلظت کمتر از حلال زیاد بوده و جریانی در امتداد سطح از ناحیه‌ای با کشش‌سطحی کم به بیشتر القا می‌کند. سطح پوشرنگ توسط سیالی که از کف کشیده می‌شود، دوباره از حلال غنی شده و تفاوت غلظت سطح را تقویت می‌کند. این پدیده جریان خود تقویت‌شونده‌ای را مادامی که تفاوت غلظت وجود داشته باشد، القا می‌کند (البته تا زمانی که غلظت در راستای عرضی لایه پوشرنگ فراتر از مقدار بحرانی است). به طور کلی برای اینکه در چنین سامانه‌های حاوی رزین به همراه عامل پخت و حلال، سطح همواری حاصل شود باید زمان نفوذ حلال به خارج از پوشرنگ کمتر از زمان پخت باشد؛ به سبب اینکه ناهمواری‌های سطحی پوشرنگ با نفوذ و کاهش شیوه غلظتی هموار شده و سپس فیلم

سلول‌های ظاهر شده ندارند. به سبب استفاده از حلال‌های کلردار و نزدیک بودن نقطه‌ی جوش این نوع حلال‌ها به دمای محیط، میان قطرات آب در سطح مشترک محلول بسپاری و هوا منجر به ایجاد تخلخل‌های در سطح می‌شوند که در اصل به سازوکار طرح‌های تنفسی^۱ مربوط هستند. با تغییر رطوبت در سامانه‌های مورد بررسی این نتیجه حاصل شد که رطوبت جو تاثیری بر ایجاد طرح‌های سطحی ندارد. اما ضخامت زیرآیند در ظاهر شدن طرح‌ها موثر است. با بررسی زیرآیندهای آلی و غیرآلی (پلی‌پروپیلن و شیشه کوارتز)، ساختارهای سلولی برای ضخامت‌های کمتر از ۱۵۰ میکرومتر از ضخامت زیرآیند به دست می‌آیند، اما برای فیلم‌های پلی‌کربنات تنهشین شده روی فولاد کرم^۲، خودسوارش^۳ در زیرآیندهای با ضخامت کمتر از ۱۰۰ میکرومتر به دست می‌آید. در اصل، به طور آزمایشگاهی نشان دادند که انتقال گرمایی در زیرآیند نقش تعیین‌کننده‌ای را در فرآیند نقش‌رویی منظم ایفا می‌کند. هم‌چنین آنها نشان دادند که مقایسه زمان خشکشدن^۴ (T_d) به طور آزمایشگاهی محاسبه می‌شود) با زمان مشخصه برای برقراری تعادل گرمایی در زیرآیند $\frac{\Delta^2}{\alpha} = T^* - \Delta$ و $\Delta = \frac{\alpha \times \delta}{1 + \delta}$ به ترتیب ضخامت و نفوذ گرمایی زیرآیند هستند) ضروری است. بر اساس مشاهدات آنها نقش‌رویی با مقیاس میکرومتر در تمام زیرآیندها، صرفاً اگر $T^* > T_d$ ، صورت می‌گیرد. برماشنکو و همکارانش، نفوذ گرمایی که در عدد مارانگونی لحظه می‌شود را به صورت مجموعی از رسانش گرمایی و عمق زیرآیند، نفوذ گرمایی مایع، (رابطه (۹)، $\Delta = \frac{\alpha \times \delta}{1 + \delta}$ به ترتیب نفوذ گرمایی زیرآیند، نفوذ گرمایی مایع، ضخامت زیرآیند و ضخامت لایه سیال هستند. بنابراین با قرار دادن نفوذ گرمایی وزنی در رابطه مارانگونی می‌توان ضخامت و رسانش گرمایی زیرآیند را در محاسبه مقدار عدد مارانگونی گرمایی لحظه کرد [۴۱].

$$\alpha = \frac{a_s \times 1 + a_f \times \delta}{1 + \delta} \quad (9)$$

هم‌چنین آنها سازوکار پیش‌برنده همرفت را در محلول‌های پلی‌استایرن و پلی‌کربنات، بسپارهای بی‌ریخت^۵، در حلال‌های کلردار و تولوئن بر زیرآیندی از جنس پلی‌پروپیلن مورد بررسی قرار دادند [۳۸]. در این نوع محلول‌ها با گرمایش زیرآیندی از کف، رویش نقش‌ها در سطح فیلم ناپدید می‌گردد. بنابراین، برماشنکو و همکارانش با تخمین عدد مارانگونی گرمایی برای گستره تغییرات دمایی ۱۰۰-۱۰۰ کلوین، مقدار آن را ۲-۲۰ به دست آورده که از حد بحرانی (۸۰) کمتر هستند. در نتیجه پیشنهاد کردنده که نوع دیگری از ناپایداری‌ها باید در نظر گرفته شوند: ناپایداری مارانگونی غلطی و یا ناپایداری معرفی شده بوسیله‌ی دی‌زن. بر اساس نظریه مطرح شده توسط دی‌زن در فیلم‌های تبخیرشونده، پرشاری از سیال غنی از حلال کاهشی موضعی در کشش سطحی القا می‌کند و به سبب حداقل شدن انرژی سطحی و در نتیجه

¹ Breath- figures

² Chrome steel

³ Self-assembling

⁴ Amorphous

می شود. حال اگر این تفاوت کشش سطحی کم باشد، ایجاد پرشارهایی در سامانه سبب انتقال جزء حل شونده که در سطح توسط تبخیر بجا مانده- اند به توده سیال می شود و به سبب این انتقال اختلاط در سامانه افزایش می یابد. تمام این موارد ذکر شده برای حالتی در نظر گرفته می شود که گرانروی در سامانه ثابت باشد، یعنی با حذف شدن حلal و افزایش جزء حل شونده تغییری در گرانروی حاصل نشود. اگر گرانروی با غلظت تغییر یابد، در مورد سامانه های بسپاری به واقعیت نزدیکتر است زیرا با افزایش جزئی غلظت بسپار، گرانروی به شدت تغییر یافته و این تغییرات به شدت بر نایکنواختی توزیع جزء حل شونده بر سطح اثر می گذارد و سبب ایجاد پستی و بلندی در سطح می شود. همین طور، در گرانروی های متغیر امکان برگشت لایه ای غنی شده از جزء حل شونده به توده ممکن نیست به سبب آن که به شدت گرانرو است و در مقابل جریان مقاومت نشان می دهد؛ بنابراین، اختلاطی صورت نمی گیرد [۴۵].

۴- نتیجه گیری

با توجه به مباحث مطرح شده، جنبش های همرفتی منجر به ایجاد طرح های سلول مانند بر سطح سیال می شوند. دو نوع سازوکار عمده برای القا کردن این نوع جنبش ها در لایه های افقی سیال مطرح است؛ نیروهای شناوری و کشش سطحی که به ترتیب توسط شیوه چگالی و کشش سطحی ایجاد می شوند. تعیین نوع نیروهای غالب برای القا همرفت بستگی به ضخامت لایه ای سیال دارد، در سامانه هایی با ضخامت های بالا و در حدود یک سانتی متر، شناوری مهمتر از کشش سطحی است، اما در ضخامت های کمتر از یک میلی متر به سبب اینکه نسبت سطح به حجم زیاد است، نیروهای کشش سطحی پراهمیت تر هستند؛ نیروهای القا کننده همرفت در قالب دو عدد بدون بعد رایله و مارانگونی به عنوانی عواملی برای تخمین پایداری و ناپایداری سامانه هایی از سیال مورد استفاده قرار می گیرند. حد بحرانی برای شروع همرفت ناشی از شناوری ۱۱۰.۸ و همرفت مارانگونی ۸۰ است. در سامانه های تک جزئی تبخیر شونده، عدد مارانگونی و رایله به واسطه دو عامل گرمایی نهان و سرعت تبخیر اصلاح شده و تبخیر علاوه بر سرمایش سطحی به عنوان عامل القا کننده همرفت نیز معروفی می شود. در سامانه های دوجزئی تبخیر شونده نیروهای القا کننده همرفت، همتاهای غلظتی نیز به دست می آورند. در سامانه های بسپاری تبخیر شونده در حین فرآیند خشک شدن و تبخیر حلal طرح هایی بر سطح فیلم ظاهر می شوند که بر خواص نهایی فیلم حاصل تاثیرگذار هستند. ایجاد این نوع طرح های سطحی تائیدی بر حضور همرفت در سامانه های بسپاری مطرح شده اند. با توجه به دو جزئی یا چند جزئی بودن سامانه های بسپاری تعیین نوع سازوکار غالب، همرفت مارانگونی گرمایی یا غلظتی، حائز اهمیت هستند، به سبب این که به واسطه آن می توان عوامل اثرگذار بر ایجاد پدیده های سطحی را پیش بینی و راهکارهایی را برای به حداقل رساندن آنها ارائه کرد. ایجاد طرح های سطحی در شروع خشک شدن لایه های نازک محلولی در حدود یک میلی متر و یا کمتر ممکن است منشا گرمایی داشته باشند و توسط همرفت مارانگونی گرمایی پیش برده شوند، اما با توجه به حذف حلal در

سخت می شود.اما اگر عکس این قضیه در سامانه برقرار باشد، پیش از اینکه شیوه غلظتی در سامانه کاهش یابد، پخت صورت گرفته و فیلم سخت می شود؛ بنابراین، طرح های سطحی ایجاد شده در سطح باقی مانده و باعث ناهمگونی سطحی می شوند [۳]. باسو و هاربی نیز تشکیل فیلم به واسطه خشک شدن محلول های پلی استایرن و تولوئن را در گستره ای از ضخامت ها (۵۵ میکرومتر تا ۱/۵ میلیمتر)، غلظت ها (۲۰، ۱۵، ۲۰) درصد حجمی) و سرعت تبخیر مورد بررسی قرار دادند [۴]. آنها نیز شیار گون شدن سطح فیلم های نهایی را به پدیده هی همرفت مارانگونی مرتبه دانستند. محاسبه اعداد مارانگونی گرمایی (عدد مارانگونی محاسبه شده توسط بسته هون) و غلظتی در سامانه های آزمایشی آنها نشان داد که همرفت در غلظت های بالا از پلی استایرن توسط ناپایداری مارانگونی گرمایی القا نمی شود. در آزمایش های صورت گرفته، زمان برای تثبیت ناپایداری های همرفتی ضریبی از ۵۰۰ ثانیه است که تقریباً ۲۵ برابر بزرگتر از نفوذ گرمایی (حلال تولوئن) است. بنابراین، احتمال دیگر، ناپایداری مارانگونی، مارانگونی غلظتی در سامانه وجود دارد. به طوری که با تبخیر حلal و ایجاد شیوه غلظتی از بسپار بین سطح و کف لایه سیال، همرفت برقرار می گیرد. توسعه و همکارانش جریان های همرفتی را در محلول پلی ایزو بوتیلن و تولوئن در لحظات اولیه شروع آزمایش ها مورد بررسی قرار دادند [۴۴]. با توجه به ضخامت انتخابی ۸ میلی متر، سازوکار شناوری پیش بزنده همرفت است ولی به مرور زمان و کاهش ضخامت لایه سیال، همرفت مارانگونی غالب می شود. آنها به منظور تعیین نوع سازوکار غلظتی و زیر آیند، پس از به دست آوردن تصویر عمودی از جریان همرفتی، به جای تولوئن از پلی ایزو بوتیلن دارد. بنابراین، تفاوت تولوئن دو تره شده چگالی بیشتری از پلی ایزو بوتیلن دارد. ناپایداری بسپار و حلal نسبت به تولوئن معمولی / بسپار معکوس است. با توجه به اینکه تبخیر، بسپار را در نزدیک سطح تغليظ می کند، حالت ناپایداری ناپایداری گرانشی غلظتی طولانی مدت در سامانه باقی نمی ماند. همین طور مرتبه بزرگ نمایی سرعت به دست آمده از تصویر سازی جریان عمودی، در هر دو مورد مشابه است. بنابراین همرفت گرمایی در سامانه را سازوکار غالب معرفی کردند. یاتسیوس و همکاران سازوکارهای بالقوه ای را که موجب چروک خوردن دائمی فیلم های بسپاری خشک شده می شوند را با استفاده از شبیه سازی مورد بررسی قرار دادند [۴۵]. سامانه های شبیه سازی شده مورد بررسی آنها محلول های پلی استایرن / تولوئن و پلی ایزو بوتیلن / تولوئن هستند. تفاوتی که بین دو نمونه بسپاری منتخب وجود دارد این است که پلی ایزو بوتیلن در دمای محیط حالت لاستیکی و پلی استایرن حالتی سخت و شکننده (زیر دمای انتقال شبیه ای) دارد [۴۶ و ۴۷]. با توجه به این تفاوت، هر دو سامانه دامنه ای از شیارهای مشابه ارائه می دهند. بر اساس نتایج حاصل از شبیه سازی، نایکنواختی های سطحی تائیدی بر حضور همرفت مارانگونی غلظتی در سامانه ها هستند. با تبخیر حلal سطح غنی از جزء حل شونده می شود. اگر تفاوت کشش سطحی جز حل شونده و حلal زیاد باشد، یعنی تمایل دو جزء بهم کم باشد، تغییر شکل زیادی در سطح آزاد ایجاد

با توجه به اینکه همرفت پرشار در حین جامدسازی سامانه‌های دو یا چند جزئی مثل محلول کلرید آمونیم آبی یا آلیاژها تعریف مشخصی دارد و موجب ایجاد ستون‌هایی در مقطع عرضی محصول نهایی می‌شود. بنابراین، درک تمایز بین همرفت غلظتی و پرشار و تعیین نوع سازوکار غالب در سامانه‌های بسپاری همچنان نیاز به بررسی‌های بیشتر چه به لحاظ نظری و چه آزمایشگاهی دارد.

سطح و افزایش غلظت بسپار، همرفت مارانگونی غلظتی نیز می‌تواند در ایجاد طرح‌های سلولی پر اهمیت شود. در برخی سامانه‌ها ایجاد طرح‌های سطحی را دلیل حضور پرشارهایی از حلal معرفی کردہ‌اند، که سبب کاهش کشش سطحی در سطح آزاد محلول و حداقل شدن پتانسیل انرژی و در نهایت پایا شدن سطح می‌شود. در پژوهش‌های مربوط به سامانه‌های بسپاری تعریف روشنی از تمایز همرفت غلظتی و پرشار ارائه نشده است؛

مراجع -۵

- V. Ha, C. Lai, "Onset of marangoni instability of a two-component evaporating droplet", *Int. J. Heat Mass Tran.*, 45, 5143–5158, 2002.
- S. G. Yiantios, B. G. Higgins, "Marangoni flows during drying of colloidal films", *Phys. Fluids* 18, 082103 (1-11), 2006.
- N. Saranjam, S. Chandra, J. Mostaghimi, H. Fan, J. Simmer, "Orange peel formation due to surface tension-driven flows within drying paint films", *J. Coatings Technol. Res.*, 13, 3, 413-426, 2016.
- N. Bassou, Y. Rharbi, "Role of benard - marangoni instabilities during solvent evaporation in polymer surface corrugations", *Langmuir*, 25, 9, 624-632, 2009.
- A. Abbasian, S. R. Ghaffarian, N. Mohammadi, M. R. Khosroshahi, M. Fathollahi, "Study on different planforms of paint's solvents and the effect of surfactants (on them)", *Prog. Org. Coat.*, 49, 424, 229–235, 2004.
- P. Hansen, M. Pierce, "Cellular convection in polymer coatings-an assessment", *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, 12, 1, 67-70, 1973.
- A. Abbasian, S. R. Ghaffarian, N. Mohammadi, "Investigation of factors affecting stratification phenomenon in epoxy-acrylic coatings", *Iranian Polymer Journal*, 3, 1, 61-68, 2004.
- B. Jc, M. Boudart, A. Acrivos, "Natural convection in pools of evaporating liquids", *J. Fluid Mech.*, 24, 4, 721-735, 1966.
- R. Lord, "On convection currents in a horizontal layer of liquid when the higher temperature is on the under side", *Phil. Mag.*, 32, 529-546, 1916.
- J. R. A. Pearson, "On convection cells induced by surface tension", *J. Fluid Mech.*, 4, 489-500, 1958.
- D. A. Nield, "Surface tension and buoyancy effects in cellular convection", *J. Fluid Mech.*, 19, 341-352, 1964.
- J. C. Berg, M. B. Andreas Acrivos, "Evaporative convection", *Adv. Chem. Eng.*, 6, 1966.
- S. W. Joo, H. Davis, S. G. Bankoff, in: S. G. Gouesbet, A. Berlemont (Eds.), "Instabilities in multiphase flow", Plenum Press, New York, 219-229, 1993.
- B. H. J. Palmer, "The hydrodynamic stability of rapidly evaporating liquids at reduced pressure", *J. Fluid Mech.*, 75, 487-511, 1976.
- N. C. Zhang, "Effects of evaporation on thermocapillary flows in a liquid thin layer", *Heat Transf. Sci. Technol.*, B.- X. Wang High. Educ. Press. Beijing, 329-334, 1996.
- S. T. Flows, N. Zhang, in: R. Savino (Eds.), "Surface tension-driven flows and applications", Research Signpost, India, 661, 2, 147-170, 2006.
- M. Bestehorn, "Convection in thick and in thin fluid layers with a free surface – The influence of evaporation", *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, 405, 391-405, 2007.
- L. Tower, "The strong influence of substrate conductivity on droplet evaporation", *J. Fluid Mech.*, 623, 329-351, 2009.
- P. Kavehpour, B. Ovryn, G. H. Mckinley, "Evaporatively-driven Marangoni instabilities of volatile liquid films spreading on thermally conductive substrates", *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 206, 409-423, 2002.
- N. Arifin, N. Bachok, "Boundary effect on the onset of marangoni convection with internal heat generation", *World Academy of Science: Engineering & Technolog (WASET)*, 40, 20-24, 2008.
- T. Köllner, K. Schwarzenberger, "Multiscale structures in solutal marangoni convection: three-dimensional simulations and supporting experiments", *Phys. Fluids*, 25, 092109(1-31), 2013.
- K. E. Uguz, R. Narayanan, "Instability in evaporative binary mixtures. I. the effect of solutal marangoni convection", *Phys. Fluids*, 24, 094101(1-12), 2012.
- J. Zhang, A. Oron, R. P. Behringer, "Novel pattern forming states for marangoni convection in volatile binary liquids", *Phys. Fluids*, 23, 072102 (1-5), 2011.
- J. Zhang, R. P. Behringer, A. Oron, "Marangoni convection in binary mixtures", *Phys. Rev. E*, 76, 016306 (1-7), 2007.
- D. J. Harris, J. A. Lewis, "Marangoni effects on evaporative lithographic patterning of colloidal films", *Langmuir*, 24, 8, 827-829, 2008.
- K. Schwarzenberger, T. Köllner, H. Linde, "Pattern formation and mass transfer under stationary solutal marangoni instability", *Adv. Colloid Interface Sci.*, 206, 344-371, 2014.
- M. Maillard, L. Motte, A. T. Ngo, M. P. Pileni, "Rings and hexagons made of nanocrystals: a marangoni effect", *J. Phys. Chem. B*, 104, 11871-11877, 2000.
- M. Hsing, F. Chen, "Stability characteristics of the mush affected by the solid layer below", *J. Crystal Growth*, 255, 369-378, 2003.
- J. P. Gu, C. Beckermann, A. F. Giamei., "Motion and remelting of dendrite fragments during directional solidification of a nickel-base superalloy", *Metall. and Mater. Transactions A*, 28, 1533-1542, 1997.
- M. G. Worster, D. W. R. Jones, "Sea-ice thermodynamics and brine drainage", *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, 373, 2015.

31. F. A. L. I. N. Chent, "Experimental study of directional solidification of aqueous ammonium chloride solution", *J. Fluid Mech.*, 227, 567-586, **1991**.
32. J. S. Turner, "Double-diffusive phenomena", *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 6, 37-56, **1974**.
33. M. G. Worster, J. S. Wetlaufer, "Natural convection, solute trapping, and channel formation during solidification of saltwater", *J. Phys. Chem. B*, 5647, 96, 6132-6136, **1997**.
34. T. Nishimura, J. Sasaki, T. T. Htoo, "The structure of plumes generated in the unidirectional solidification process for a binary system", *Int. J. Heat Mass Tran*, 46, 4489-4497, **2003**.
35. L. Pauchard, C. Allain, "Buckling instability induced by polymer solution drying", *Europhys. Lett.*, 62, 6, 897-903, **2003**.
۳۶. ف. میرجلیلی، س. مرادیان، ف. عامری شهرایی، "جلوه ظاهری روکش‌های خودرویی، بخش اول: مروری بر مهمنترین ویژگی‌های ظاهری"، *نشریه علمی ترویجی مطالعات در دنیای رنگ*، ۲، ۴۰-۲۹، **۱۳۹۱**.
۳۷. ن. خلیلی، ف. عامری شهرایی، "مروری بر روش‌های کنترل جلوه ظاهری روکش‌های سطحی خودرویی"، *نشریه علمی ترویجی مطالعات در دنیای رنگ*، ۳-۱۲، ۳-۱۳۹۲.
38. S. Sakurai, C. Furukawa, A. Okutsu, "Control of mesh pattern of surface corrugation via rate of solvent evaporation in solution casting of polymer film in the presence of convection", *Polym.*, 43, 3359-3364, **2002**.
39. E. Bormashenko, R. Pogreb, O. Stanevsky, "Mesoscopic patterning in thin polymer films formed under the fast dip-coating process", *Macromol. Mater. Eng.*, 290, 114-121, **2005**.
40. E. Bormashenko, A. Malkin, A. Musin, "Mesoscopic patterning in evaporated polymer solutions: poly (ethylene glycol) and polyorganosilanes/-siloxanes promote formation of honeycomb Structures", *Macromol. Chem. Phys.*, 209, 567-576, **2008**.
41. E. Bormashenko, S. Balter, R. Pogreb, "On the mechanism of patterning in rapidly evaporated polymer solutions: Is temperature-gradient-driven marangoni instability responsible for the large-scale patterning?", *J. Colloid Interface Sci.*, 343, 2, 602-607, **2010**.
42. P. G. De Gennes, "Instabilities during the evaporation of a film:non-glassy polymer/ volatile solvent", *Eur. Phys. J. E*, 6, 421-424, **2001**.
43. T. W. Dutton, L. R. Pate, D. K. Hollingsworth, "Imaging of surface-tension-driven convection using liquid crystal thermography", *J. Heat Transfer*, 132, 121601 (1-6), **2015**.
44. G. Toussaint, H. Bodiguel, C. Allain, "Experimental characterization of buoyancy- and surface tension-driven convection during the drying of a polymer solution", *Int. J. Heat Mass Transf.*, 51, 4228-4237, **2008**.
45. S. G. Yiantios, S. K. Serpetsi, F. Doumenc, "Deformation and film corrugation during drying of polymer solutions induced by marangoni phenomena", *Int. J. Heat Mass Tran.*, 89, 1083-1094, **2015**.
46. B. Trouette, E. Chénier, F. Doumenc, "Transient rayleigh-bénard-marangoni solutal convection", *Phys. Fluids*, 24, 074108 (1-25), **2012**.
47. F. Doumenca, E. Chénier, B. Trouette, "Free convection in drying binary mixtures: solutal versus thermal instabilities", *Int. J. Heat Mass Tran.*, 63, 336-350, **2013**.