

无容器条件下 Cu-Pb 偏晶的快速生长*

刘向荣 王楠 魏炳波

(西北工业大学应用物理系, 西安 710072)

(2004 年 5 月 9 日收到 2004 年 11 月 18 日收到修改稿)

在落管无容器条件下实现了 Cu-10% Pb 亚偏晶和 Cu-37.4% Pb 偏晶的快速生长. 发现随着液滴过冷度的增大, 亚偏晶中初生(Cu)相的生长形态经历“粗大枝晶→碎断枝晶→等轴晶”的转变. 偏晶的组织形态从多个偏晶胞组织演化为单个偏晶胞组织. 理论计算表明, 直径在 1000—60 μm 之间的亚偏晶和偏晶合金液滴, 最大过冷度分别为 269 K(0.2 T_L) 和 245 K(0.2 T_M). 亚偏晶合金中初生(Cu)枝晶的最大生长速度为 2.4 m/s, 枝晶生长过程主要由溶质扩散控制. 偏晶合金中 Marangoni 对流效应比 Stokes 运动显著, 并且随着液滴直径的减小 Marangoni 迁移速率逐渐减小.

关键词: 无容器处理, 深过冷, 晶体生长, 相分离

PACC: 6125M, 6150J, 6155H, 6470D

1. 引言

晶体生长是凝聚态物理和材料科学领域的重要研究课题之一^[1-8]. 由于偏晶反应 $L_1 \rightarrow L_2 + S$ 涉及一种液相分解为一种固相和另外一种液相, 其形核特点和生长机制是晶体生长研究的重要内容. 另外, 偏晶合金通常由两种物理性质和化学性质相差很大的元素组成, 可构成具有独特性能的材料^[9, 10]. 因此, 偏晶生长引起了人们极大的兴趣.

对于偏晶合金的研究多采用定向凝固的方法, 目的是获得均匀弥散的复相组织. 但偏晶转变的生成相往往存在密度差, 所以在地面条件下由重力引起的浮力对流作用会导致熔体发生分层现象, 造成严重的比重偏析^[11]. 因此, 近 20 年来已进行了一些空间实验以探索微重力条件下形成均匀弥散偏晶合金的可能性^[12, 13]. 这些实验中偏晶合金大多是在坩锅中凝固, 重力的消除并不能保证均匀组织的形成. 还有许多非重力控制的因素影响着偏晶相分离行为, 比如热毛细对流、Ostwald 熟化、坩锅的润湿、不混溶两相之间的界面能最小化等等都能引起分离两相的迁移、粗化和宏观偏析^[14, 15].

液滴在落管中自由下落时处于无容器、低(微)

重力和快速冷却状态, 是地面模拟空间环境比较全面的一种实验方法. 对于偏晶合金, 无容器效应不仅消除了偏晶生长过程中两个液相与坩锅壁浸润不同造成生成相的分布不均匀, 而且可以使偏晶合金熔体达到深过冷, 使其在亚稳状态下的相变过程出现新规律. 微重力条件使液相宏观运动在一定程度上受到抑制, 有助于获得比较均匀的组织结构. 同时, 一些在常规重力条件下被掩盖的运动机制将显现出来. 较快的冷却速率使晶体形核后没有足够的时间生长, 由此得到的合金微观结构与常规条件下将有很大区别. 因此, 落管无容器条件是研究偏晶合金形成机制的理想环境.

Cu-Pb 二元偏晶合金虽然已经在地面和空间条件下进行了一些实验^[16-18], 但都是在与器壁或吸附介质接触中完成. 本文选取 Cu-10% Pb 亚偏晶和 Cu-37.4% Pb 偏晶合金作为研究对象进行落管实验, 旨在研究 Cu-Pb 偏晶在无容器条件下的快速生长过程, 并通过对过冷度、形核率和 Marangoni 迁移速率的分析, 揭示其微观结构演变规律和相分离机制.

2. 实验方法

实验在 3 m 落管中进行, 液滴下落时的重力水

* 国家自然科学基金(批准号: 50121101, 50395105, 50101010)和霍英东教育基金(批准号: 71044)资助的课题.

平估计为 $10^{-2}—10^{-3} g_0$ ($g_0 = 9.8 \text{ m/s}^2$). 所用试样由高纯 Cu(99.999%) 和 Pb(99.99%) 在高频感应熔炼装置中 Ar 气保护下熔配而成, 每个试样质量约为 1 g. 实验时, 把试样放入 $\phi 16 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$ 底部开有 $\phi 0.3 \text{ mm}$ 小孔的石英试管中, 再将试管安装在落管顶部的真空室内. 将系统抽真空至 $2.0 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 后, 以 1:2 的体积比反充高纯 He 气(99.999%) 和 Ar 气(99.999%) 至 $1.0 \times 10^5 \text{ Pa}$. 用高频感应熔炼装置将试样熔化并过热 100 K, 然后在试管内充入高压 Ar 气, 合金熔体从试管底部喷出并分散成为许多微小液滴, 液滴在下落过程中凝固后在落管底部收集. 加热过程中试样温度由 NQ06/11C3.4V250 型红外测温仪测量.

将收集到的合金颗粒按尺寸分级、镶嵌和抛光, 用 60 ml $\text{FeCl}_3 + 20 \text{ ml HCl} + 20 \text{ ml H}_2\text{O}$ 混合溶液进行腐蚀. 采用 XJG-05 型光学显微镜和 S2700 型扫描电子显微镜对组织形貌进行观测和分析.

3. 实验结果与分析讨论

Cu-Pb 二元合金系相图^[19]如图 1 所示, 偏晶点温度为 1228.15 K, 成分是 Cu-37.4% Pb. 本文研究两种合金, 分别为 Cu-10% Pb 亚偏晶和 Cu-37.4% Pb

偏晶, 它们在实验中获得的最大过冷度一起标注在图 1 中(图 1 中 ΔT_{max} 表示最大过冷度, T_L 为液相线温度, T_M 为偏晶点温度).

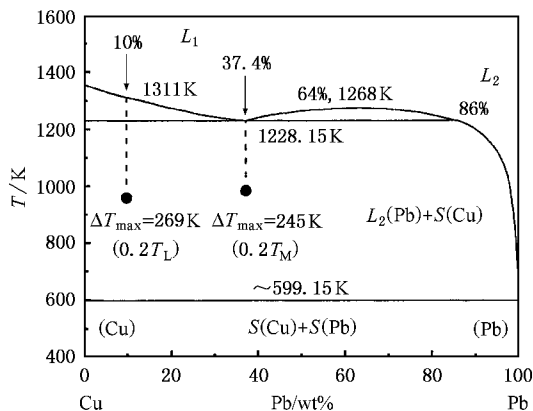


图 1 两种偏晶合金在 Cu-Pb 二元相图中的位置

3.1. 液滴在下落过程中的过冷度

落管实验中, 液滴直径在微米级, 很难直接测定它们在下落过程中的温度变化和凝固前达到的过冷度, 但可以通过形核理论进行计算. 具体过程是通过推导两参考函数 Φ 和 Ψ , 确立过冷度 ΔT 与合金液滴直径 D 的关系. 函数 Φ 和 Ψ 的表达式如下^[20]:

$$\frac{\Psi(T_N, D)}{T_N \cdot \Delta T^2} = \ln \Phi(T_N, D), \tag{1}$$

$$\Phi(T_N, D) = \frac{\frac{\pi}{6} D^3 K_V \Delta T^3 T_N^2}{\Psi(T_N, D) \left(-\frac{dT_d}{dt} \right) (3T_L - T_N) + [\kappa + 2\epsilon(T_N - T_g)] \Delta T^3 T_N^2}, \tag{2}$$

式中

$$\Psi(T_N, D) = \frac{16\pi\sigma_{SL}^2 T_L^2 f(D)}{3k_B \rho_d^2 \Delta H^2}, \tag{3}$$

$$\kappa = \frac{12k_g}{\rho_d C_p D^2}. \tag{4}$$

这里, T_N 为合金液滴形核温度, T_d 为合金液滴的温度, T_L 为液相线温度, T_g 为气体的温度, ϵ 为热辐射系数, k_B 为玻尔兹曼常数, k_g 为气体热传导系数, σ_{SL} 为液固界面能, ρ_d 为合金液滴的密度, C_p 为液态合金的质量定压热容, ΔH 为合金的结晶潜热.

由(1)–(4)式即可得出该合金液滴的形核温度

T_N , 进一步可求得其形核过冷度 ΔT . 按照此方法计算出的 Cu-10% Pb 亚偏晶和 Cu-37.4% Pb 偏晶合金液滴形核过冷度 ΔT 与液滴直径 D 的关系如图 2 所示.

可以看出, 随着液滴直径的减小过冷度逐渐增大, 对应于实验所得直径为 1000—60 μm 的 Cu-10% Pb 亚偏晶和 Cu-37.4% Pb 偏晶合金液滴, 其过冷度范围分别为 79—269 和 73—245 K, 最大过冷度分别达 $0.2T_L$ 和 $0.2T_M$, 并且分别符合函数关系式

$$\Delta T = 76 + 252e^{-0.0043D}, \tag{5}$$

$$\Delta T = 70 + 222e^{-0.0043D}. \tag{6}$$

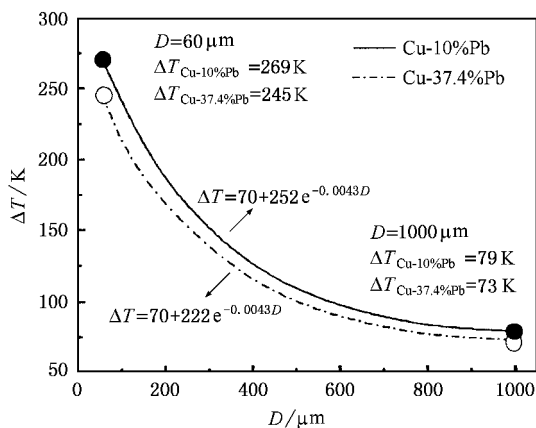


图2 过冷度与液滴直径的关系

3.2. 亚偏晶的组织形貌和生长机制

Cu-10% Pb 亚偏晶位于偏晶点的左侧(如图 1 所示)其液相线温度为 1311 K. 在平衡相变条件下,当温度降到 1311 K 时, $S(\text{Cu})$ 固溶体开始从均一的液相中析出,当温度降至偏晶点温度 1228.15 K 时,发生偏晶转变 $L_1 \rightarrow S(\text{Cu}) + L_2(\text{Pb})$. 随着温度继续降低, L_2 液相逐渐减少,并且在 599.15 K 经历一个共晶转变 $L_2 \rightarrow S(\text{Cu}) + S(\text{Pb})$. 因此,室温下平衡相变的最终组织是 $S(\text{Cu})$ 固溶体和富 Pb 相的两相复合组织.

图 3 是在落管无容器条件下得到的不同直径 Cu-10% Pb 亚偏晶合金液滴的凝固组织,图中灰色相为 $S(\text{Cu})$ 黑色相为富 Pb 相. 可以看出,对于不同尺寸的液滴,虽然 $S(\text{Cu})$ 固溶体总是以枝晶方式生长,富 Pb 相主要在枝晶间生成,但 $S(\text{Cu})$ 相生长形态随液滴尺寸发生变化. 当液滴直径较大时(图 3(a), 600 μm), $S(\text{Cu})$ 固溶体表现为粗大的枝晶形貌,以辐射状从液滴的边缘向中心生长,并且逐渐变得粗大. 当液滴直径减小时(图 3(b), 400 μm), $S(\text{Cu})$ 枝晶变得短小并且没有确定的生长方向. 这是因为当液滴的直径减小时,其含有的异质晶核的数目也会减少,容易获得较大的过冷度. 此时,由于液滴尺寸的减小,表面和内部的温度相差不是很显著, $S(\text{Cu})$ 枝晶可在各个方向上生长并迅速凝固从而得到短小的碎断枝晶;随着液滴直径的进一步减小(图 3(c), 60 μm),在整个液滴中 $S(\text{Cu})$ 固溶体都趋向于生成等轴晶组织. 说明当液滴直径非常小时,大的过冷度和冷却速率使得液滴内部形核点均匀、晶体快速生长,从而得到等轴晶组织.

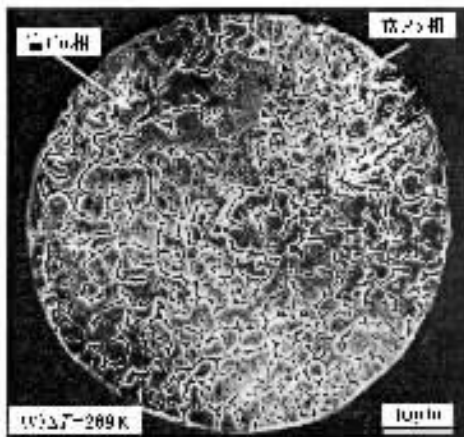
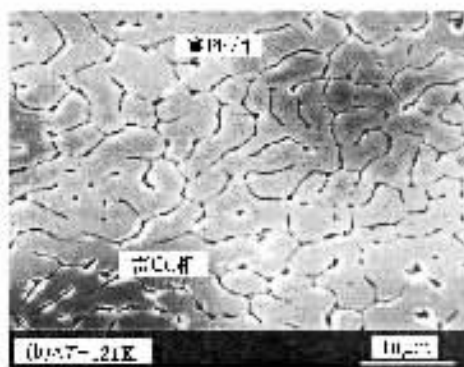
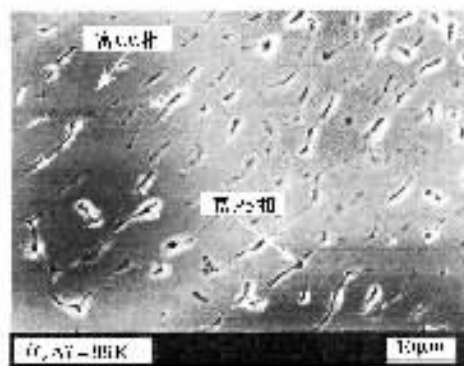


图3 Cu-10% Pb 亚偏晶合金的快速凝固组织 (a) $D = 600 \mu\text{m}$, 粗大的 $S(\text{Cu})$ 枝晶 (b) $D = 400 \mu\text{m}$, 碎断的 $S(\text{Cu})$ 枝晶 (c) $D = 60 \mu\text{m}$, $S(\text{Cu})$ 等轴晶

实验中测定了 $S(\text{Cu})$ 二次枝晶间距与液滴尺寸的关系,结合(5)式过冷度的计算公式换算得到 $S(\text{Cu})$ 二次枝晶间距与过冷度的关系,如图 4 所示. 显然,随着过冷度的增大二次枝晶间距也随着减小. 它们之间的函数关系式是

$$d_2 = 2.37 + 20.86^{-0.02\Delta T} \quad (7)$$

实际上,二次枝晶间距的变化反映了生长速度的大小. 生长速度越大,二次枝晶间距越小. 小液滴的过冷度和冷却速率都比较大,因而生长速度

大,得到的二次枝晶间距小,组织明显细化.

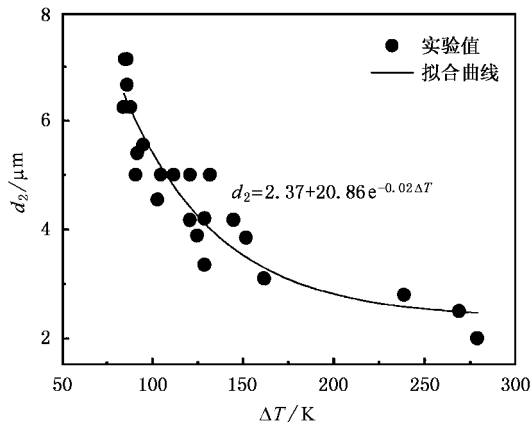


图4 二次枝晶间距与液滴过冷度的关系

3.3. 快速枝晶生长的动力学特征

LKT/BCT 枝晶生长理论^[21, 22]是目前计算枝晶生长动力学最为成功的模型.为了进一步揭示 Cu-10% Pb 亚偏晶合金中初生相(Cu)枝晶的生长机制,利用该模型对(Cu)枝晶生长速度 V 、枝晶顶端半径 R 、部分过冷度 ΔT_p (包括热过冷 ΔT_t 、溶质过冷 ΔT_c 、曲率过冷 ΔT_r 和动力学过冷 ΔT_k)与总体过冷度 ΔT 的关系进行了理论计算.计算结果如图5和图6所示.

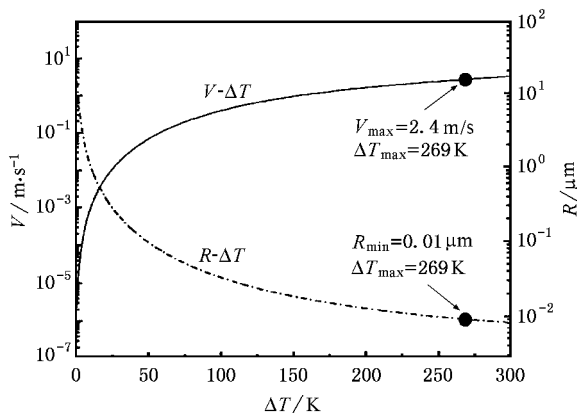


图5 Cu-10% Pb 亚偏晶中枝晶生长速度和顶端半径与过冷度的关系

从图5可以看出,随着过冷度的增加枝晶生长速度保持迅速增大的趋势,同时,枝晶顶端半径迅速减小.在本文实验所达到的最大过冷度 $\Delta T = 269$ K时,枝晶生长速度为 2.4 m/s,枝晶顶端半径约为 0.01 μm .

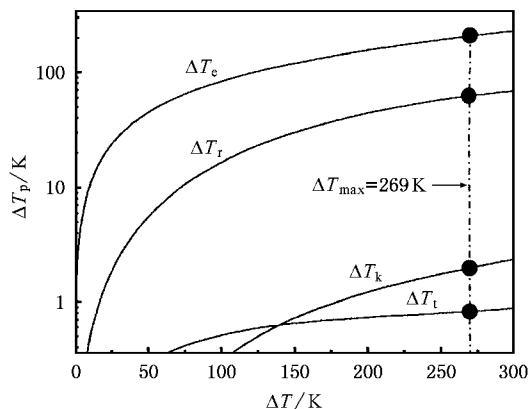


图6 Cu-10% Pb 亚偏晶合金部分过冷度与整体过冷度的关系

图6所示为部分过冷度与总体过冷度的关系,可以看出对于 Cu-10% Pb 亚偏晶,在本文实验所能达到的过冷度范围内,溶质过冷 ΔT_c 始终占主导地位,说明 $S(\text{Cu})$ 枝晶向液相中推进时溶质扩散起主要作用.

3.4. 偏晶的组织形貌和生长机制

在平衡相变条件下,当 Cu-37.4% Pb 液态合金的温度降至 1228.15 K 时,发生偏晶转变 $L_1 \rightarrow S(\text{Cu}) + L_2(\text{Pb})$,即均一的液相 L_1 转变为 $S(\text{Cu})$ 固溶体和另一个液相 L_2 .当温度继续降低时, L_2 液相逐渐减少,并且在 599 K 经历一个共晶转变 $L_2 \rightarrow S(\text{Cu}) + S(\text{Pb})$.室温下平衡相变的最终组织是 $S(\text{Cu})$ 和 $S(\text{Pb})$ 的两相复合组织.

图7给出了 Cu-37.4% Pb 偏晶在落管自由下落过程中快速生长的组织形貌,白色相是 $S(\text{Cu})$ 固溶体,黑色相是富 Pb 相.图7(a)是一个直径为 700 μm 的液滴的生长全貌图,该颗粒中分布着许多个呈球形的偏晶胞.一般认为,偏晶胞是快速偏晶转变的产物,其内部是 $S(\text{Cu})$ 和富 Pb 相的共生组织.从图7(a)可以看出,此种组织细密并在生长过程中优先形成,偏晶胞外部有一较厚不同于内部的层状组织,这种分层的原因可能是外部熔体的温度由于内部释放出来的结晶潜热升高,使过冷度比内部小,导致外部生长速率比内部小,从而形成不同于内部的层状组织.偏晶胞之间是粗大的两相组织,是慢速生长的产物.图7(b)是一个直径为 500 μm 的液滴,富 Pb 相呈颗粒状均匀弥散分布于 $S(\text{Cu})$ 的基底上,并且从液滴的边缘到中心富 Pb 相由大变小,这种情况是由 Marangoni 对流引起的.相变初期,由于液

滴靠近边缘的部分温度较低,易于形核,因此富 Pb 液相优先在这一区域形核.随后由于由外到内的温度差,导致 Marangoni 对流,使得液滴由外(冷端)向内(热端)移动.移动过程中富 Pb 相发生碰撞而凝聚长大,因此导致如图 7(b)所示组织形貌.实际上,这种组织形貌类似于图 7(a)中的一个偏晶胞,只是整个颗粒由一个偏晶胞长大所形成.

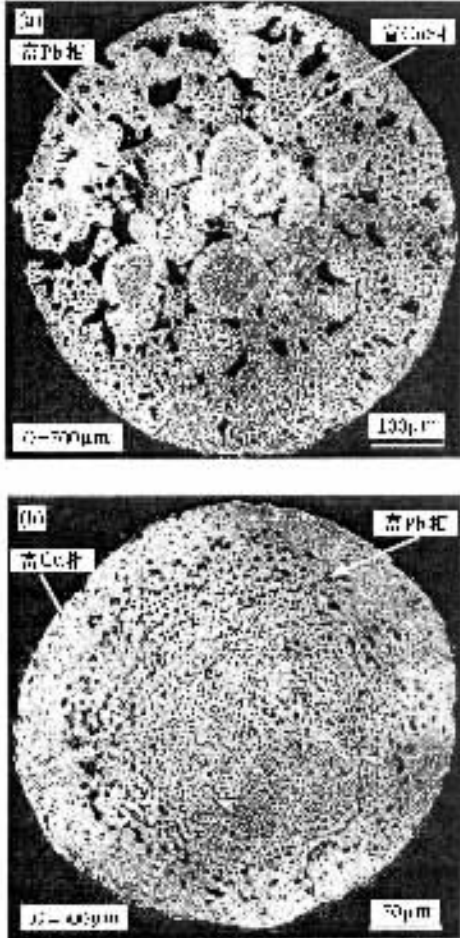


图 7 Cu-37.4% Pb 偏晶合金快速凝固组织形貌 (a) $\Delta T = 81$ K, 多个偏晶胞组织 (b) $\Delta T = 96$ K 均匀弥散的单个偏晶胞组织

以上两种组织形貌在不同直径的液滴中都出现,只不过概率不一样.对实验中 Cu-37.4% Pb 偏晶合金液滴的凝固组织形貌进行了统计,结果列于表 1.

表 1 Cu-37.4% Pb 偏晶快速生长组织形貌的统计

液滴直径/ μm	含多个偏晶胞的液滴数	含单个偏晶胞的液滴数
800—600	15	0
600—400	25	3
400—200	33	7
200—100	5	39
< 100	4	71
总计	82(40.6%)	120(59.4%)

从表 1 可以看出,具有单个偏晶胞组织的液滴占总液滴数的 59.4%,其余为含多个偏晶胞组织的液滴.图 8 给出了液滴生长形貌分布图.随着液滴直径的减小,具有单个偏晶胞组织的液滴数增加,而含多个偏晶胞组织的液滴数则是先增加后减少.很明显,偏晶生长形态变化的总趋势是向单个偏晶胞组织发展.直径范围在 800—300 μm 之间的液滴,含多个偏晶胞组织的占绝对多数.直径小于 200 μm 的液滴,几乎全呈单个偏晶胞组织.

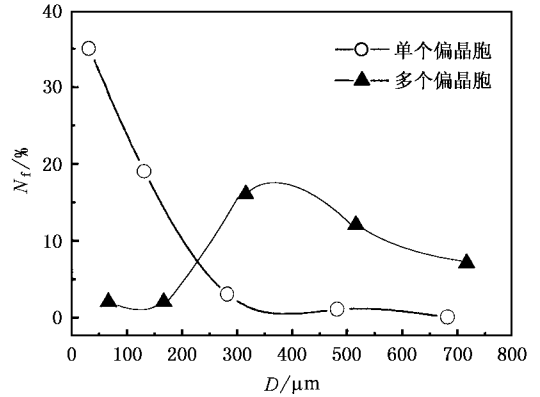


图 8 液滴生长形貌分布图

3.5. Cu-37.4% Pb 偏晶合金形核率

在 Cu-Pb 二元体系的偏晶转变过程中,存在富 Cu 固相和富 Pb 液相的竞争形核.通常情况下,哪一相优先形核将影响最后的凝固组织.

均质形核率可按照经典形核理论计算,具体公式^[23]如下:

$$I = I_0 \exp \left[- \frac{16\pi\gamma^3 (T_L)^2}{3(\Delta H_m)(\Delta T)^2 k_B T} \right] \exp \left(- \frac{Q}{RT} \right), \quad (8)$$

式中, I_0 是形核因子,通常取为 $10^{41} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$; k_B 是玻尔兹曼常数,其值为 $1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$; ΔH_m 为结晶潜热; Q 为扩散激活能; γ 为界面能.

在计算过程中,界面能 γ 是对形核率影响较大的关键参数之一.对于 $\alpha\text{-Fe}$ 固相和富 Sn 液相形核率的计算,首先要计算液相 L_1 和固相 $S_{\alpha\text{-Fe}}$ 之间的界面张力 γ_{SL} .液相 L_1 (母液) 和 L_2 (富 Sn 液相) 之间的界面张力 γ_{LL} .

γ_{SL} 可按下式^[24]计算:

$$\gamma_{\text{SL}} = \alpha \Delta S_f \left(\frac{V_m}{N_A} \right)^{1/3} T, \quad (9)$$

式中, α 是结构因子, ΔS_f 是熔化熵, V_m 是摩尔体积, T 是温度, N_A 是阿伏伽德罗常数.

γ_{LL} 的计算公式^[25]如下:

$$\gamma_{LL} = \frac{6\sqrt{2}}{N_A Z a^2} \left[\Omega (c_\alpha - c_0) \gamma + \frac{\Delta H_m}{2} \right], \quad (10)$$

式中, Z 是最近邻原子数, a 是固相的点阵参数, Ω 是规则溶液模型中的相互作用参数.

依照(8)–(10)式计算出的富 Cu 固相和富 Pb 液相的均质形核率见图 9 所示. 从图 9 可以看出, 富 Pb 液相的均质形核率远远大于富 Cu 固相的均质形核率, 两者的临界形核过冷度分别为 90 和 213 K, 亦即富 Pb 液相优先从母液中形核. 图 7(b) 中的富 Pb 相呈球形颗粒证明了这一点. 在实验中, 形核机制主要是异质形核, 异质形核率曲线与图 9 中曲线相似, 只不过两条曲线都向左移动.

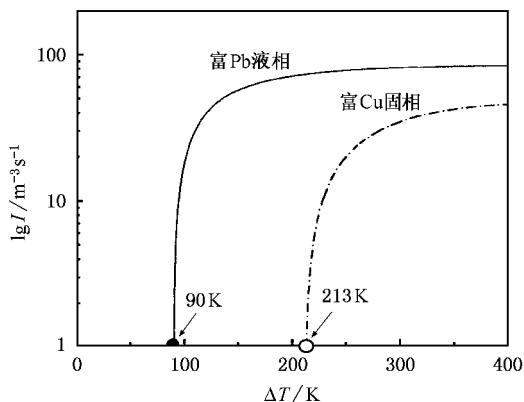


图 9 富 Pb 液相和富 Cu 固相的均质形核率

3.6. Marangoni 迁移速率

地面重力条件下, Marangoni 对流作用不太明显因为它被 Stokes 运动所掩盖. 然而在微重力条件下, Marangoni 对流有可能凸显出来. 因此, 以下计算并比较了 Cu-37.4% Pb 偏晶合金在落管中的 Marangoni 对流和 Stokes 运动速率.

液相的 Marangoni 迁移速率 V_{Ma} 可按下式^[26, 27]计算:

$$V_{Ma} = - \frac{2k_1 \nabla \gamma}{(2k_1 + k_2)(2\eta_1 + 3\eta_2)} r, \quad (11)$$

式中, $\nabla \gamma$ 是表面张力梯度, k_1 和 k_2 分别是基底相和分散相的热导率, η_1 和 η_2 分别是基底相和分散相的黏度, r 是被分散的 L_2 液相的半径.

由(11)式计算所得 Marangoni 迁移速率 V_{Ma} 和第

二相半径 r 的关系见图 10. 从图 10 可以看出, 当过冷度保持一定值时, V_{Ma} 随着 r 的增大而增大; 当 r 为一定值时, V_{Ma} 随过冷度的增大而减小.

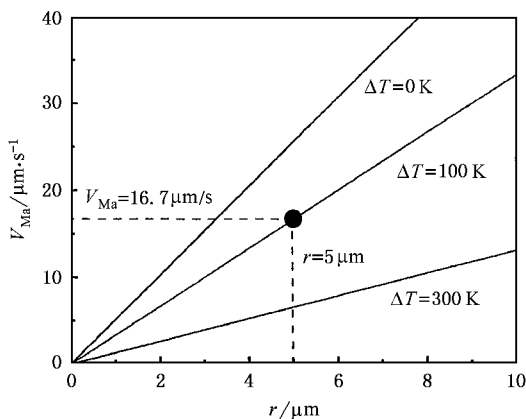


图 10 Marangoni 迁移速率与第二相半径的关系

相应地, 液相的 Stokes 运动速率 V_{St} 可按照 Stokes 方程式^[28]计算,

$$V_{St} = \frac{2g(\rho_1 - \rho_2)(\eta_1 + \eta_2)}{3\eta_1(2\eta_1 + 3\eta_2)} r^2, \quad (12)$$

式中, g 是落管中残余的重力加速度, 在本文实验中 $g = 10^{-2} g_0$ (g_0 为地面重力加速度, 其值为 9.8 m/s^2), ρ_1 和 ρ_2 分别是基底相和分散相的密度.

V_{St} 与 r 的关系如图 11 所示. 显然, 液相的 Stokes 运动速率 V_{St} 随着重力水平的降低显著降低.

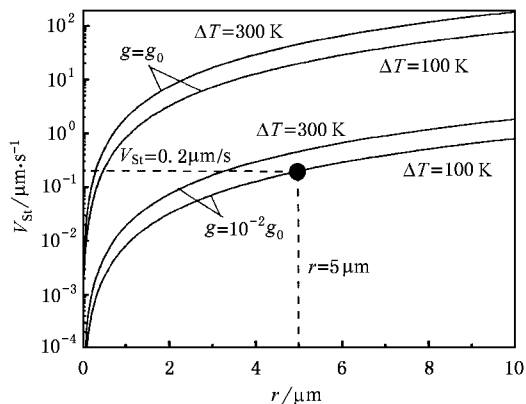


图 11 Stokes 运动速率与第二相半径的关系

在重力水平一定的情况下, 随其过冷度的增大而增大. 在过冷度一定的情况下, V_{St} 随 L_2 液相半径的变化趋势类似于 Marangoni 迁移速率 V_{Ma} , 只是变化的程度不同而已. 比较图 10 和图 11, 当分散相液滴的半径为 $5 \mu\text{m}$ 、过冷度为 100 K 时, V_{Ma} 和 V_{St} 分别为

16.7 和 0.2 $\mu\text{m/s}$. 说明在此条件下 V_{Ma} 比 V_{St} 快 83 倍.

上述计算说明,在落管微重力条件下,Marangoni 对流的效应比 Stokes 运动显著,并且随着过冷度的增加,Marangoni 迁移速率减小.另外,Marangoni 效应对大液滴中分散相的影响比在小液滴中更显著,这意味着大液滴中的分散相由于 Marangoni 迁移更容易碰撞和凝并.这也是图 7 中小液滴比大液滴更容易获得 L_2 相均匀弥散分布组织的原因.

4. 结 论

1) 理论计算得到液滴直径在 1000—60 μm 之间的 Cu-10% Pb 亚偏晶和 Cu-37.4% Pb 偏晶,过冷度范围分别为 79—269 和 73—245 K,最大过冷度分别达 0.2 T_L 和 0.2 T_M . 由此可以看出,随着液滴直径的逐渐减小液滴的过冷度迅速增大,这是液滴生长

形态变化的主要原因.

2) Cu-10% Pb 亚偏晶的快速生长过程中,随着液滴直径的减小,初生(Cu)相的生长形态经历“粗大枝晶→碎断枝晶→等轴晶”的演化,枝晶生长过程主要由溶质扩散控制.在本文实验所达到的最大过冷度 269 K 时,枝晶生长速度为 2.4 m/s,枝晶顶端半径约为 0.01 μm .

3) 对于 Cu-37.4% Pb 偏晶合金,液滴的生长形态从多个偏晶胞组织演化为单个偏晶胞组织.在落管微重力条件下,Marangoni 对流效应比 Stokes 运动显著.并且随着液滴直径的减小 Marangoni 迁移速率逐渐减小,液滴中的分散相更不容易碰撞和凝并,因而小液滴比大液滴更容易获得均匀弥散分布的组织.

实验过程中曾得到臧渡洋硕士、曹崇德教授、解文军博士等同事的帮助,在此一并致谢.

- [1] Rosa C D , Park C , Thomas E L *et al* 2000 *Nature* **405** 433
- [2] Ihle T , M-Krumbhaar H 1994 *Phys. Rev. E* **49** 2927
- [3] Yao W J , Wei B 2003 *Chin. Phys.* **12** 1272
- [4] Liu X R , Cao C D , Wei B 2003 *Chin. Phys.* **12** 1266
- [5] Yao W J , Yang C , Han X J *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 448 (in Chinese) [姚文静、杨春、韩秀君等 2003 物理学报 **52** 448]
- [6] Stöcker C , Ratke L 1999 *J. Cryst. Growth* **203** 582
- [7] Wang N , Zhang J , Wei B *et al* 2000 *Chin. Phys.* **9** 532
- [8] Xu J F , Wei B B 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1909 (in Chinese) [许锦锋、魏炳波 2004 物理学报 **53** 1909]
- [9] Wang C P , Liu X J , Ohnuma I *et al* 2002 *Science* **297** 990
- [10] Aoi I , Yoshida M , Fukunaga H *et al* 2001 *J. Cryst. Growth* **222** 806
- [11] Beyesens D , Guenoun P , Perrot F 1988 *Phys. Rev. A* **38** 4173
- [12] Potard C 1982 *Acta Astronautica* **9** 245
- [13] Andrews J B , Sandlin A C , Merrick R A 1991 *Adv. Spa. Res.* **11** 291
- [14] Conti M , Meerson B , Peleg A *et al* 2002 *Phys. Rev. E* **65** 046117
- [15] Falk F 1991 *Adv. Space. Res.* **11** 282
- [16] Han X J , Wang N , Wei B 2001 *Prog. Nat. Sci.* **11** 602
- [17] Kamio A , Kumai S , Tezuka H 1991 *Mater. Sci. Eng. A* **146** 1005
- [18] Bergman A , Fredriksson H , Shahani H 1988 *J. Mater. Sci.* **23** 1573
- [19] Massalski T B 1992 *Binary Alloy Phase Diagrams* (U. S. A. : ASM International) p1453
- [20] Lee E , Ahn S 1994 *Acta Metall. Mater.* **42** 3231
- [21] Lipton J , Kurz W , Trivedi R 1987 *Acta Metall.* **35** 957
- [22] Trivedi R , Lipton J , Kurz W 1987 *Acta Metall.* **35** 965
- [23] Kurz W , Fisher D J 1998 *Fundamentals of Solidification* (4th ed) (Switzerland : Trans. Tech. Publications Ltd.) p32
- [24] Spaepen F 1975 *Acta Metall.* **23** 729
- [25] Bush R , Gärtner F , Borchner C *et al* 1995 *Acta Metall.* **43** 3467
- [26] Marangoni C 1871 *Ann. Phys. Chem.* **143** 337
- [27] Young N O , Golgstein J S , Block M J 1958 *J. Fluid Mech.* **6** 350
- [28] Ratke L , Voorhees P W 2002 *Growth and Coarsening* (New York : Springer-Verlag) p239

Rapid growth of Cu-Pb monotectics under containerless condition^{*}

Liu Xiang-Rong Wang Nan Wei Bing-Bo

(*Department of Applied Physics, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China*)

(Received 9 May 2004; revised manuscript received 18 November 2004)

Abstract

Rapid growth of Cu-10%Pb hypermonotectics and Cu-37.4%Pb monotectics have been achieved under containerless condition in drop tube. With the increase of droplet undercooling, the primary(Cu) phase in hypermonotectics shows a morphology transition of "coarse dendrite→fragmental dendrite→equiaxed dendrite". The monotectic microstructure transfers from multiple monotectic cell to single monotectic cell. Corresponding to the droplet diameter changing from 1000 to 100 μm , the calculated maximum undercooling for hypermonotectics and monotectics are 269 K ($0.2 T_L$) and 245 K ($0.2 T_M$) respectively. The maximum growth velocity of (Cu) dendrite is 2.4 m/s in Cu-10%Pb hypermonotectics. The growth of primary (Cu) phase is always controlled by solute diffusion. The effect of Marangoni migration is more significant than that of Stokes motion, and the Marangoni migration velocity decreases when droplet diameter becomes small.

Keywords : containerless, undercooling, crystal growth, phase separation

PACC : 6125M, 6150J, 6155H, 6470D

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50121101, 50395105, 50101010) and the Fok Ying-Tong Educational Foundation (Grant No. 71044).