

各向异性作用下合金定向凝固界面稳定性的渐近分析*

王志军 王锦程† 杨根仓

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2007 年 2 月 5 日收到, 2007 年 6 月 19 日收到修改稿)

采用渐近分析方法对考虑了界面能各向异性的单相二元合金平界面定向凝固过程进行了线性稳定性分析, 得到了特定条件下的零级、一级渐近解, 并通过对长波段渐近解的讨论得出了适用于整个波段的色散关系. 分析表明零级渐近解等效于成分过冷理论, 而一级渐近解则与 M-S 稳定性理论一致. 在稳定状态控制参数(抽拉速度和温度梯度)的选择图中, 界面能各向异性增大了不稳定区域, 且在高速和高温度梯度时的影响更强.

关键词: 定向凝固, 界面稳定性, 渐近分析, 各向异性

PACC: 8130F, 8110F, 6470D

1. 引言

凝固界面形态演化与稳态选择直接决定了实际材料和铸件的凝固组织特征和性能, 而另一方面, 由于定向凝固过程的可控性及其在凝固理论研究上的重要性, 定向凝固界面稳定性及其形态演化一直是物理学家和材料学家关注的焦点之一^[1-5]. 成分过冷理论^[3]和 Mullins-Sekerka 线性稳定性理论(M-S 理论)^[4, 5]的提出为定向凝固界面稳定性的定性及定量分析奠定了基础. Warren 和 Langer^[6]通过分析界面前沿的初始溶质扩散场的发展过程对平界面的稳定性进行了时间相关的半解析数值分析, 从理论上揭示了界面稳定性的时间相关特性.

固/液界面能各向异性是影响晶体生长形态演化与微观组织选择的一个非常重要的参数^[7]. 对自由枝晶来讲, 形成稳定的枝晶尖端形态的必要条件就是具有一定的界面能各向异性, 同样, 对定向凝固过程的界面稳定性也有重要影响. Coriell 和 Sekerka^[8]首先采用类似于 M-S 理论的线性稳定分析方法研究了界面能和界面动力学各向异性对单相二元合金平界面稳定性的影响, 认为界面能各向异性使得毛细效应依赖于生长方向, 而动力学各向异性导致界面出现行波不稳定. McFadden 等^[9]针对不同

生长方向对界面能各向异性的影响作了弱非线性分析, 给出了不同生长方向下胞状组织花样的选择. Hoyle 等^[10]对各向异性作用下组织花样选择的弱非线性分析做了总结. Golovin 和 Davis^[11]发现在深过冷自由生长时各向异性对界面形貌稳定性也有类似的影响. 总之, 以上的研究结论表明动力学各向异性对平界面的临界失稳并没有影响, 而界面能的各向异性对平界面失稳有重要影响.

M-S 理论的分析过程是对凝固系统进行简化, 建立具有解析解的线性扰动微分方程, 找到精确的色散关系. 这种方法只能适用于简化的特殊情形, 对于目前不存在严格解析解的一般情形, 除数值方法外只能通过渐近解来研究系统的特征. 因此渐近方法可以用来研究更为一般的复杂凝固系统. Xu^[12]成功利用该方法系统地研究了枝晶生长问题, 并提出了整体界面波理论. 目前, 关于界面能各向异性的工作中, 采用渐近分析的方法研究界面能各向异性对界面稳定性的影响还很少见. 因此本文将采用渐近分析方法深入研究界面能各向异性对单相二元合金定向凝固过程平界面稳定性的影响.

2. 合金定向凝固的数学模型

单相二元合金定向凝固过程主要由扩散控制,

* 国家自然科学基金(批准号: 50401013)和教育部留学回国人员科研启动基金资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

可用热扩散方程、浓度扩散方程及相应的边界条件来描述。为简单起见,假设固/液两相的密度和热扩散系数相等,并忽略固相溶质扩散过程以及界面动力学效应。各向异性的形式采用四轴对称表示 $\gamma = \gamma_0(1 + \gamma_4 \cos 4\theta)$, 其中 γ_0 为表面张力系数, γ_4 为各向异性强度因子, θ 为界面法向方向与对称轴的夹角。对于扁平试样,其凝固过程可简化为长度方向为 z , 宽度方向为 x 的二维问题,用如下一组无量纲方程描述:

$$\begin{aligned} \nabla^2 T_L &= \lambda \left(\frac{\partial T_L}{\partial t} - \frac{\partial T_L}{\partial z} \right), \\ \nabla^2 T_S &= \lambda \left(\frac{\partial T_S}{\partial t} - \frac{\partial T_S}{\partial z} \right), \\ \lambda &= \frac{D_L}{\kappa}, \\ \nabla^2 C_L &= \left(\frac{\partial C_L}{\partial t} - \frac{\partial C_L}{\partial z} \right). \end{aligned} \quad (1)$$

边界条件:

1) 温度为 T_H 高温区的边缘, $z = L_1/l_D$, $T =$

$$\frac{T_H - T_M}{\Delta H/c_p \rho};$$

2) 温度为 T_L 低温区的边缘, $z = -L_2/l_D$, $T =$

$$\frac{T_L - T_M}{\Delta H/c_p \rho};$$

3) 远离界面的液相区, $z \rightarrow \infty$, $C_L = 1$,

$$T_L = T_S = T_I,$$

$$T_I = \varepsilon^2 \frac{h_{xx}}{(1 + h_x^2)^{3/2}} (1 - 15\gamma_4 \cos 4\theta) - M_c C;$$

4) 在固液界面上, $z = h(x, t)$,

$$\frac{\partial}{\partial z} (T_L - T_S) - h_x \frac{\partial}{\partial x} (T_L - T_S) + \lambda (h_x + 1) = 0,$$

$$\frac{\partial C}{\partial z} - h_x \frac{\partial C}{\partial x} + \alpha (1 - k) (h_x + 1) = 0. \quad (2)$$

无量纲长度单位 l_D 为 D_L/V , 时间单位为 D_L/V^2 , 温度单位为 $\Delta H/(c_p \rho)$, 浓度单位为 C_∞ 。其中

h 表示固液界面的位置, $\varepsilon^2 = \frac{l_c}{l_D} = \frac{\gamma_0 c_p \rho T_M}{(\Delta H)^2 l_D}$ 与

表面张力系数成正比, 无量纲参数 $M_c = -\frac{mC_\infty}{\Delta H/c_p \rho}$,

T_L 和 T_S 分别表示液相和固相中的温度, C_L, D_L 表示液相的浓度和溶质扩散系数, T_M 为纯溶剂组元的熔点温度, m 为液相线斜率, $l_c = \frac{\gamma_0 c_p \rho T_M}{(\Delta H)^2}$ 为毛细长度, k 为溶质分配系数, κ 为热扩散系数, V 为抽拉速度, C_∞ 为无穷远处液相浓度, ΔH 为单位体积的

潜热, c_p 为定压热容, ρ 为密度, L_1 和 L_2 分别为界面到高温端和低温端的实际长度。

对于这样的凝固问题,由于温度扩散场和浓度扩散场在尺度上的巨大差异,在求解过程中对温度场线性近似,求得其稳态解为

$$\begin{aligned} T_B &= T_{BI} + Gz, \\ T_{BI} &= -M_c C_{BL}(0), \\ G &= \frac{T_H - T_L}{L_1 - L_2}, \\ C_{BL} &= 1 + \frac{1-k}{k} e^{-z}, \end{aligned} \quad (3)$$

这里所得到的稳态解将作为扰动分析的基态解, G 表示线性假设的温度梯度, T_{BI} 为界面的温度, C_{BL} 为液相的浓度。

3. 线性扰动的渐近分析

3.1. 线性扰动方程

对于线性系统可以近似认为非定常解是基态和扰动态的叠加(在变量的上边加 \sim 来区别基态与扰动态):

$$\begin{aligned} T_L(x, z, t) &= T_{BL}(z) + \tilde{T}_L(x, z, t), \\ T_S(x, z, t) &= T_{BS}(z) + \tilde{T}_S(x, z, t), \\ C_L(x, z, t) &= C_{BL}(z) + \tilde{C}_L(x, z, t), \\ h(x, t) &= h_B + \tilde{h}(x, t). \end{aligned} \quad (4)$$

扰动分析中,扰动态的振幅相对于基态为高阶小量,因此分析的过程中可以忽略非线性项。线性化后,系统的扰动方程和边界条件如下(为简单起见,下文中方程中 \tilde{T} 表示 \tilde{T}_L 和 \tilde{T}_S , \tilde{C} 表示 \tilde{C}_L):

$$\begin{aligned} \nabla^2 \tilde{T} &= \lambda \left(\frac{\partial \tilde{T}}{\partial t} - \frac{\partial \tilde{T}}{\partial z} \right), \\ \nabla^2 \tilde{C} &= \left(\frac{\partial \tilde{C}}{\partial t} - \frac{\partial \tilde{C}}{\partial z} \right), \\ \tilde{T}_L &= 0, \\ \tilde{C} &= 0 \quad (z \rightarrow \infty) \\ \tilde{T}_S &= 0, \quad (z \rightarrow -\infty) \end{aligned} \quad (5)$$

界面 $z=0$ 处,

$$\tilde{T}_L - \tilde{T}_S = 0,$$

$$\tilde{T}_S = \varepsilon^2 \tilde{h}_{xx} (1 - 15\gamma_4) - M_c \tilde{C} + \left(\frac{1-k}{k} M_c - G \right) \tilde{h},$$

$$\frac{\partial}{\partial z} (\tilde{T}_L - \tilde{T}_S) + \lambda \tilde{h}_t = 0,$$

$$\frac{\partial \tilde{C}}{\partial z} + \frac{1-k}{k} \tilde{h}_t + (1-k) (\tilde{C} + \tilde{h}) = 0.$$

3.2. 多尺度渐近解

3.2.1. 多尺度渐近展开

比较界面条件(6)中各变量的数量级,可以看出 \tilde{h}_{xx} 必须是 $O(\tilde{h}/\epsilon^2)$. 于是可在系统中假设新变量:

$$\begin{aligned} x_+ &= \frac{\alpha(\epsilon)}{\epsilon} x, \\ z_+ &= \frac{g(\epsilon)}{\epsilon} z, \\ t_+ &= \frac{\alpha(\epsilon)}{\epsilon} t. \end{aligned} \tag{7}$$

将新变量看成独立变元,当 $\{\alpha(\epsilon), g(\epsilon), \alpha(\epsilon)\} = O(1)$ 时,系统可以采用多重变量来描述. 系统中与表面张力有关的参数 ϵ 是一个相对小量,可将其作为渐近展开参数,可将扰动系统的解 $\{\tilde{T}, \tilde{C}\}$ 和相应的波数 $\{\alpha(\epsilon), g(\epsilon), q_L(\epsilon), q_S(\epsilon)\}$ 特征值 $\{\alpha(\epsilon)\}$ 表示为

$$\begin{aligned} \tilde{T} &= e^t \{ \tilde{T}_0(x, z, x_+, z_+, t) + \epsilon \tilde{T}_1(\cdot) + \dots \}, \\ \tilde{C} &= e^t \{ \tilde{C}_0(x, z, x_+, z_+, t) + \epsilon \tilde{C}_1(\cdot) + \dots \}, \\ \tilde{h} &= e^t \{ \tilde{h}_0(x, z, x_+, z_+, t) + \epsilon \tilde{h}_1(\cdot) + \dots \}, \\ \alpha(\epsilon) &= a_0 + \epsilon a_1 + \dots, \\ g(\epsilon) &= a_0 + \epsilon g_1 + \dots, \\ q_L(\epsilon) &= a_0 + \epsilon q_{L1} + \dots, \\ q_S(\epsilon) &= a_0 + \epsilon q_{S1} + \dots, \\ \alpha(\epsilon) &= \sigma_0 + \epsilon \sigma_1 + \dots, \end{aligned} \tag{8}$$

$g(\epsilon)$ 对应于浓度场的解, $q_L(\epsilon)$ 和 $q_S(\epsilon)$ 分别对应于液相和固相温度场的解. 采用多重变量后,相应系统控制方程和边界条件变为

$$\begin{aligned} &\left(a^2 \frac{\partial^2}{\partial x_+^2} + q^2 \frac{\partial^2}{\partial z_+^2} \right) \tilde{T} \\ &= \lambda \epsilon \left(\sigma \tilde{T} - q \frac{\partial \tilde{T}}{\partial z_+} - 2a \frac{\partial^2 \tilde{T}}{\partial x \partial x_+} - 2q \frac{\partial^2 \tilde{T}}{\partial z \partial z_+} \right) \\ &\quad - \epsilon^2 \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \lambda \frac{\partial}{\partial z} \right) \tilde{T}, \\ &\left(a^2 \frac{\partial^2}{\partial x_+^2} + g^2 \frac{\partial^2}{\partial z_+^2} \right) \tilde{C} \\ &= \epsilon \left(\sigma \tilde{C} - g \frac{\partial \tilde{C}}{\partial z_+} - 2a \frac{\partial^2 \tilde{C}}{\partial x \partial x_+} - 2g \frac{\partial^2 \tilde{C}}{\partial z \partial z_+} \right) \\ &\quad - \epsilon^2 \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial}{\partial z} \right) \tilde{C}, \end{aligned} \tag{9}$$

$$\begin{aligned} \tilde{T}_L &= 0, \tilde{C} = 0 \quad (z_+ \rightarrow \infty) \\ \tilde{T}_S &= 0. \quad (z_+ \rightarrow -\infty) \end{aligned} \tag{10}$$

界面 $z = z_+ = 0$ 上,

$$\tilde{T}_L - \tilde{T}_S = 0,$$

$$\begin{aligned} \tilde{T}_s &= \left(a^2 \frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial x_+^2} + 2\epsilon a \frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial x \partial x_+} + \epsilon^2 \frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial x^2} \right) \\ &\quad \times (1 - 15\gamma_4) - M_C \tilde{C} + \left(\frac{1-k}{k} M_C - G \right) \tilde{h}, \\ &\frac{\partial}{\partial z_+} (q_L \tilde{T}_L - q_S \tilde{T}_S) + \epsilon \frac{\partial}{\partial z} (\tilde{T}_L - \tilde{T}_S) \\ &\quad + \lambda \sigma \tilde{h} = 0, \\ &\left(g \frac{\partial}{\partial z_+} + \epsilon \frac{\partial}{\partial z} \right) \tilde{C} + \frac{1-k}{k} \sigma \tilde{h} \\ &\quad + \epsilon (1 - k) (\tilde{C} + \tilde{h}) = 0. \end{aligned} \tag{12}$$

将扰动解的渐近展开式(8)(9)代入方程(10)和边界条件(11)(12),比较渐近参数 ϵ 的各级幂次,可以得到各级近似方程和相应边界条件.

3.2.2. 多尺度展开下的零级近似解

零级近似下的方程和边界条件为

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x_+^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_+^2} \right) \begin{pmatrix} \tilde{T} \\ \tilde{C} \end{pmatrix} = 0, \tag{13}$$

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{10} &= 0, \tilde{C}_0 = 0 \quad (z_+ \rightarrow \infty) \\ \tilde{T}_{S0} &= 0. \quad (z_+ \rightarrow -\infty) \end{aligned} \tag{14}$$

$z = z_+ = 0$ 处 界面条件

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{10} - \tilde{T}_{S0} &= 0, \\ \tilde{T}_{S0} &= a_0^2 \frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial x_+^2} (1 - 15\gamma_4) - M_C \tilde{C} \\ &\quad + \left(\frac{1-k}{k} M_C - G \right) \tilde{h}_0, \end{aligned} \tag{15}$$

$$a_0 \frac{\partial}{\partial z_+} (\tilde{T}_{10} - \tilde{T}_{S0}) + \lambda \sigma_0 \tilde{h}_0 = 0,$$

$$a_0 \frac{\partial \tilde{C}_0}{\partial z_+} + \frac{1-k}{k} \sigma_0 \tilde{h}_0 = 0.$$

上述零级近似方程有如下形式的正则模式解:

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{10} &= A_{10} e^{ix_+ - z_+}, \\ \tilde{T}_{S0} &= A_{S0} e^{ix_+ + z_+}, \\ \tilde{C}_{10} &= C_0 e^{ix_+ - z_+}, \\ \tilde{h}_0 &= D_0 e^{ix_+}. \end{aligned} \tag{16}$$

振幅项是变量 (x, z) 的函数,而零级方程和边界条件中都不含有变量 (x, z) ,可以近似地认为它们是常数. 将解(16)式代入界面条件(15),可确定振幅项间的关系和如下的零阶色散关系:

$$\sigma_0 = \frac{a_0}{\frac{\lambda}{2} + M_C \frac{1-k}{k}} \left\{ M_C \frac{1-k}{k} - G - a_0^2 (1 + 15\gamma_4) \right\}. \tag{17}$$

3.2.3. 多尺度展开下的一级近似解

零级近似解忽略了 ϵ 的高阶项,为了得出精确

的结果,需要进一步分析 ε 一次项的影响.在一级近似下,可以得到如下的方程:

$$a_0^2 \left(\frac{\partial^2}{\partial x_+^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_+^2} \right) \begin{pmatrix} \tilde{T}_{\text{Ll}} \\ \tilde{C}_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\lambda}{2} + \frac{\lambda\sigma_0}{2a_0} + a_1 - q_{\text{Ll}} \\ \frac{1}{2} + \frac{\lambda\sigma_0}{2a_0} + a_1 - g_1 \end{pmatrix} 2a_0 e^{ix_+ - z_+}, \quad (18)$$

$$a_0^2 \left(\frac{\partial^2}{\partial x_+^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_+^2} \right) \tilde{T}_{\text{Sl}} = - \left(\frac{\lambda}{2} - \frac{\lambda\sigma_0}{2a_0} - a_1 + q_{\text{Ll}} \right) 2a_0 e^{ix_+ + z_+}.$$

$z = z_+ = 0$ 处,相应的界面条件为

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{\text{Ll}} - \tilde{T}_{\text{Sl}} &= 0, \\ \tilde{T}_{\text{Sl}} &= \left(a_0^2 \frac{\partial^2 \tilde{h}_1}{\partial x_+^2} + 2a_0 \frac{\partial^2 \tilde{h}_0}{\partial x \partial x_+} + 2a_0 a_1 \frac{\partial^2 \tilde{h}_0}{\partial x_+^2} \right) \\ &\quad \times (1 - 15\gamma_4) - M_c \tilde{C}_1 + \left(\frac{1-k}{k} M_c - G \right) \tilde{h}_1, \end{aligned} \quad (19)$$

$$\begin{aligned} a_0 \frac{\partial}{\partial z_+} (\tilde{T}_{\text{Ll}} - \tilde{T}_{\text{Sl}}) + \frac{\partial}{\partial z_+} (q_{\text{Ll}} \tilde{T}_{\text{Ll}} - q_{\text{Sl}} \tilde{T}_{\text{Sl}}) \\ + \frac{\partial}{\partial z} (\tilde{T}_{\text{Ll}} - \tilde{T}_{\text{Sl}}) + \lambda (\sigma_0 \tilde{h}_1 + \sigma_1 \tilde{h}_0) &= 0, \\ a_0 \frac{\partial \tilde{C}_1}{\partial z_+} + g_1 \frac{\partial \tilde{C}_0}{\partial z_+} + \frac{1-k}{k} (\sigma_0 \tilde{h}_1 + \sigma_1 \tilde{h}_0) \\ + 1 - k (\tilde{C}_0 + \tilde{h}_0) &= 0. \end{aligned}$$

对于一级近似方程,为了得到在 $z \gg 1$ 的区域内的一致有效渐近解,必须假定控制方程(18)的右端项为零.否则方程的特解将有一项含有 $z_+ \tilde{C}_0$,与此对应的渐近解中的第二项将含有 $\varepsilon z_+ \tilde{C}_0 = g z \tilde{C}_0$.当 $z \gg 1$ 时,一级修正项 $\varepsilon \tilde{C}_1$ 将超过首相 \tilde{C}_0 ,从而使渐近展开失效.同时可以假定 $a_1 = 0$,可以得到

$$\begin{aligned} g_1 &= \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\sigma_0}{a_0} \right), \\ q_{\text{Ll}} &= \frac{\lambda}{2} \left(1 + \frac{\sigma_0}{a_0} \right), \\ q_{\text{Sl}} &= q_{\text{Ll}} - \lambda. \end{aligned} \quad (20)$$

由此可以得到方程(18)的正则模式解为

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{\text{Ll}} &= A_{\text{Ll}} e^{ix_+ - z_+}, \\ \tilde{T}_{\text{Sl}} &= A_{\text{Sl}} e^{ix_+ + z_+}, \\ \tilde{C}_{\text{Ll}} &= C_1 e^{ix_+ - z_+}, \\ \tilde{h}_1 &= D_1 e^{ix_+} \end{aligned} \quad (21)$$

和一级的色散关系

$$\sigma_1 \left(\lambda + 2M_c \frac{1-k}{k} \right)$$

$$= -2M_c(1-k) - 2M_c \frac{1-k}{k} (1-k-g_1) \frac{\sigma_0}{k_0} \quad (22)$$

至此较为精确的色散关系描述可以为

$$\alpha(k_0) = \sigma_0 + \varepsilon \sigma_1 + O(\varepsilon^2). \quad (23)$$

3.3. 长波段渐近解

3.3.1. 单一尺度下的渐近展开

上述讨论的多尺度渐近展开只有在 $a \gg \varepsilon$ 时才成立,当 $a = O(\varepsilon)$,扰动解将不具有多尺度结构.由于 a 和 ε 同阶,于是可以将变量进行如下形式的同阶代换:

$$\hat{x} = \hat{k}x, \hat{z} = \hat{g}z, \hat{t} = \hat{\sigma}t, \quad (24)$$

这里 $\hat{a} = \frac{a}{\varepsilon}$, $\hat{g} = \frac{g}{\varepsilon}$, $\hat{\sigma} = \frac{\sigma}{\varepsilon}$, $\hat{q}_s = \frac{q_s}{\varepsilon}$, $\hat{q}_L = \frac{q_L}{\varepsilon}$, \hat{q}_s 和 \hat{q}_L 与 \hat{g} 对应.

采用新的变量后,原系统的扰动方程和界面条件转化为

$$\begin{aligned} \left(\hat{k}^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{x}^2} + \hat{q}^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{z}^2} \right) \tilde{T} &= \lambda \left(\hat{\sigma} \frac{\partial \tilde{T}}{\partial \hat{t}} - q \frac{\partial \tilde{T}}{\partial \hat{z}} \right), \\ \left(\hat{k}^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{x}^2} + \hat{g}^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{z}^2} \right) \hat{C} &= \left(\hat{\sigma} \frac{\partial \hat{C}}{\partial \hat{t}} - q \frac{\partial \hat{C}}{\partial \hat{z}} \right), \end{aligned} \quad (25)$$

$$\tilde{T}_L - \tilde{T}_S = 0,$$

$$\begin{aligned} \tilde{T}_S &= \varepsilon^2 \hat{a}^2 \frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial \hat{x}^2} (1 - 15\gamma_4) \\ &\quad - M_c \hat{C} + \left(\frac{1-k}{k} M_c - G \right) \tilde{h}, \end{aligned} \quad (26)$$

$$\frac{\partial}{\partial \hat{z}} (\hat{q}_L \tilde{T}_L - \hat{q}_S \tilde{T}_S) + \lambda \hat{\sigma} \tilde{h} = 0,$$

$$\hat{g} \frac{\partial \hat{C}}{\partial \hat{z}} + \frac{1-k}{k} \hat{\sigma} \tilde{h} + (1-k) (\hat{C} + \tilde{h}) = 0.$$

在长波区域,扰动态的解可以按以下形式作渐近展开:

$$\begin{aligned} \tilde{T} &= e^{\hat{t}} \{ \tilde{T}_0(x, z) + \varepsilon^2 \tilde{T}_1(\cdot) + \dots \}, \\ \hat{C} &= e^{\hat{t}} \{ \hat{C}_0(x, z) + \varepsilon^2 \hat{C}_1(\cdot) + \dots \}, \\ \tilde{h} &= e^{\hat{t}} \{ \tilde{h}_0(x, z) + \varepsilon^2 \tilde{h}_1(\cdot) + \dots \}, \end{aligned} \quad (27)$$

$$\begin{aligned} \hat{a}(\varepsilon) &= \hat{a}_0 + \varepsilon^2 \hat{a}_1 + \dots, \\ \hat{g}(\varepsilon) &= \hat{a}_0 + \varepsilon^2 \hat{g}_1 + \dots, \\ \hat{q}_L(\varepsilon) &= \hat{a}_0 + \varepsilon^2 \hat{q}_{\text{Ll}} + \dots, \end{aligned} \quad (28)$$

$$\hat{q}_S(\varepsilon) = \hat{a}_0 + \varepsilon^2 \hat{q}_{\text{Sl}} + \dots,$$

$$\hat{\sigma}(\varepsilon) = \hat{\sigma}_0 + \varepsilon^2 \hat{\sigma}_1 + \dots.$$

3.3.2. 单一尺度下的零级渐近解

在零级近似条件下,单一尺度的方程和界面条

件如下：

$$\begin{aligned} \left(\hat{k}_0^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{x}^2} + \hat{q}_0^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{z}^2} \right) \tilde{T}_0 &= \lambda \left(\hat{\sigma}_0 \tilde{T}_0 - q \frac{\partial \tilde{T}_0}{\partial \hat{z}} \right), \\ \left(\hat{k}_0^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{x}^2} + \hat{g}_0^2 \frac{\partial^2}{\partial \hat{z}^2} \right) \hat{C} &= \left(\hat{\sigma}_0 \hat{C}_0 - \hat{g}_0 \frac{\partial \hat{C}_0}{\partial \hat{z}} \right), \end{aligned} \quad (29)$$

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{10} - \tilde{T}_{s0} &= 0, \\ \tilde{T}_{s0} &= -M_c \tilde{C}_0 + \left(\frac{1-k}{k} M_c - G \right) \tilde{h}_0, \\ \frac{\partial}{\partial \hat{z}} (\hat{q}_{10} \tilde{T}_{10} - \hat{q}_{s0} \tilde{T}_{s0}) + \lambda \hat{\sigma}_0 \tilde{h}_0 &= 0, \\ \hat{g}_0 \frac{\partial \tilde{C}_0}{\partial \hat{z}} + \frac{1-k}{k} \hat{\sigma}_0 \tilde{h}_0 + (1-k) \tilde{C}_0 + \tilde{h}_0 &= 0. \end{aligned} \quad (30)$$

相应地方程的解和色散关系为

$$\begin{aligned} \tilde{T}_{10} &= \hat{A}_{10} e^{i\hat{x}-\hat{z}}, \\ \tilde{T}_{s0} &= \hat{A}_{s0} e^{i\hat{x}+\hat{z}}, \\ \tilde{C}_{10} &= \hat{C}_0 e^{i\hat{x}-\hat{z}}, \\ \tilde{h}_0 &= \hat{D}_0 e^{i\hat{x}}; \end{aligned} \quad (31)$$

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_0 &= \frac{2\bar{q}_0(-1+k+\hat{g}_0)}{\lambda(-1+k+\hat{g}_0)+2\bar{q}_0 M_c \left(\frac{1-k}{k} \right)} \\ &\times \left\{ M_c \left(\frac{1-k}{k} \right) - G \right\}, \end{aligned} \quad (32)$$

其中 $\hat{g}_0 = \frac{1}{2} + \sqrt{\hat{a}_0^2 + \hat{\sigma}_0 + \frac{1}{4}}$, $\bar{q}_0 = \sqrt{\hat{a}_0^2 + \lambda \hat{\sigma}_0 + \frac{\lambda^2}{4}}$.

4. 结果与讨论

4.1. 色散关系的统一描述

以上的渐近分析过程,分别得到了单相二元合金定向凝固过程中浓度场和温度场扰动态的渐近解,并得出了较为精确的色散关系.对于二元系来说,溶质扩散系数和热扩散系数的比值 λ 远小于 1,因此可以做 $\lambda \rightarrow 0$ 的简化,即忽略温度场扰动的影响.这样一来,在多尺度分析中的色散关系(23)式可以表示为

$$\begin{aligned} \sigma &= -\epsilon k + \left\{ a_0 + \epsilon \left(k + \frac{\sigma_0}{2a_0} - \frac{1}{2} \right) \right\} \\ &\times \left(1 - \frac{G}{M_c(1-k)\gamma k} - \frac{a_0^2(1-15\gamma_4)}{M_c(1-k)\gamma k} \right) + O(\epsilon^2). \end{aligned} \quad (33)$$

而对于长波段单一尺度的色散关系(32)式,变

换为原来的参数(σ_0, a_0)后,

$$\begin{aligned} \sigma &= -\epsilon k + \left(-\epsilon + \epsilon k + g_0 \right) \\ &\times \left(1 - \frac{G}{M_c(1-k)\gamma k} \right) + O(\epsilon^2), \\ g_0 &= \frac{\epsilon}{2} + \sqrt{a_0^2 + \epsilon \sigma_0 + \frac{\epsilon^2}{4}}. \end{aligned} \quad (34)$$

当 $a_0 \gg \epsilon$ 时,对 g_0 进行展开,可以将色散关系作适用于整个波段的统一描述为

$$\begin{aligned} \sigma &= -\epsilon k + \left(-\epsilon + \epsilon k + g_0 \right) \left(1 - \frac{G}{M_c(1-k)\gamma k} \right. \\ &\left. - \frac{a_0^2(1-15\gamma_4)}{M_c(1-k)\gamma k} \right) + O(\epsilon^2). \end{aligned} \quad (35)$$

通过色散关系图 1 可以看出,对应于某些控制参数所有波数的特征值 σ 都小于零,即平界面对所有的扰动都是稳定的.而如果存在对应于 σ 大于零的波数时,该扰动下的平界面将失稳.从示意图中可以推断存在临界控制参数使 $a_0 = a_{0c}$ 时,特征值 $\sigma = 0$.对于其他波数,特征值都小于零,这时平界面处于临界稳定状态.从图中还可以定性地推断各向异性的存在增加了系统的不稳定性.

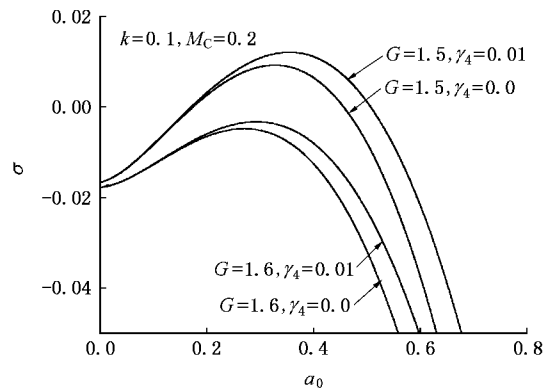


图 1 不同温度梯度和界面能各向异性条件下的统一色散关系曲线 a_0 为波数

4.2. 界面能各向异性对稳定性的影响

4.2.1. 控制参数的转换

为简化分析过程,在建立模型时对凝固系统进行了无量纲化.然而在实际定向凝固过程中要考察的是温度梯度和抽拉速度两个重要控制参数对系统稳定性的影响.由于长度尺度和时间尺度都与抽拉速度 V 有关, V 的改变,将改变系统中所有与长度量纲和时间量纲相关的量,另外无量纲温度梯度 G 的值也与 V 有关.色散关系(35)式的形式不便于考

察控制参数对系统稳定性的影响,因此有必要重新定义只依赖某一特定控制条件的无量纲参数.新尺度可表示如下:

$$d_c = -\frac{\gamma_0 T_M}{m(1-k)\gamma k C_\infty \Delta H}, \quad (36)$$

$$l_c = -\frac{m(1-k)\gamma k C_\infty}{(T_H - T_L)(L_1 + L_2)},$$

d_c 与表面张力系数 γ_0 成正比,可以认为是修正的化学毛细长度, l_c 与温度梯度成反比,为修正的热传导长度.于是下列关系式成立:

$$\frac{\epsilon^2}{M_C(1-k)\gamma k} = \frac{d_c}{l_D} \frac{G}{M_C(1-k)\gamma k} = \frac{l_D}{l_C}, \quad (37)$$

引入如下新的独立依赖于单一控制参数的无量纲参数:

$$v = \frac{d_c}{l_D}, \beta = \frac{d_c}{l_C}, \quad (38)$$

参数 v 仅与抽拉速度成正比, β 仅与温度梯度成正比.采用修正的化学毛细长度 d_c 代替热扩散长度作为长度尺度,相应地用 d_c/V 作为时间尺度.于是上述色散关系在新参数下为

$$\hat{\sigma} = -k + \left(k - \frac{1}{2} + \sqrt{\hat{a}_0^2 + \hat{\sigma}_0 + \frac{1}{4}} \right) \times \left(1 - \frac{\beta}{v} - v\hat{a}_0^2(1 - 15\gamma_4) \right) + O(\epsilon^2) \quad (39)$$

其中 $\hat{\sigma} = \frac{\sigma}{\epsilon}$, $\hat{a}_0 = \frac{a}{\epsilon}$.

4.2.2. 零级近似解与成分过冷判据

新控制参数下,色散关系(35)式的零级近似为

$$\hat{\sigma}_0 = \hat{a}_0 \left(1 - \frac{\beta}{v} - v\hat{a}_0^2(1 - 15\gamma_4) \right). \quad (40)$$

由扩散控制的凝固过程大都针对非棱面晶体,通常其各向异性的系数比较小,即 $1 - 15\gamma_4 > 0$. 当 $\hat{\sigma}_0 > 0$ 时扰动随时间增大,凝固界面失稳.由此可以看出,当 $v > \beta$ 时系统是不稳定的.转化为温度梯度和抽拉速度的关系即为

$$\frac{D}{V} > -\frac{m(1-k)\gamma k C_\infty}{(T_H - T_L)(L_1 + L_2)}, \quad (41)$$

此即成分过冷判据.由分析可知,成分过冷理论是没有考虑界面能作用的凝固过程扰动系统的零级渐近解.

4.2.3. 考虑高阶项的界面稳定性判据

对于色散关系(39)式来说,其临界稳定的情形应该是 $\hat{\sigma}$ 与 \hat{a}_0 轴存在唯一的交点.于是存在如下代数方程组:

$$\begin{aligned} \hat{\sigma} &= 0, \\ \hat{\sigma}' &= 0. \end{aligned} \quad (42)$$

将色散关系(39)式代入方程组(42),化简后得到

$$k = 2v \left(\hat{a}_0^2 + \frac{1}{4} \right)^{1/2} \left[\left(\hat{a}_0^2 + \frac{1}{4} \right)^{1/2} + k - \frac{1}{2} \right]^2. \quad (43)$$

解这个方程即可得到临界稳定时的临界波数 \hat{a}_c ,即色散关系曲线与波数轴的切点,然后将其代入上述代数方程组即可得到 (β, v) 平面上的中性稳定曲线:

$$\beta = v \left[1 - v\hat{a}_c^2(1 - 15\gamma_4) - (2vk)^2 \left(\hat{a}_c^2 + \frac{1}{4} \right)^{1/4} \right]. \quad (44)$$

如图2所示,曲线上的每一点都对应于由(44)式给出的系统临界稳定控制条件.从图中可以看出成分过冷判据 $\beta > v$ 给出的稳定性区域要远远小于考虑与界面能有关的高阶项所确定的稳定性区域.系统的临界稳定控制参数存在两个极值: β_{\max} 和 v_{\max} .这与 M-S 理论是一致的,即当温度梯度足够大,使 $\beta > \beta_{\max}$ 时,凝固过程对于所有的抽拉速度 V 都是稳定的;另一方面当抽拉速度充分大,使 $v > v_{\max}$ 时,凝固过程对于所有的正的温度梯度都是稳定的.

关于界面能各向异性的影响,从图2中可以明显地看出,各向异性增大了系统的不稳定区域.随着各向异性强度的增加, β_{\max} 逐渐增加,而 v_{\max} 不变.对于某一确定的生长速度,临界稳定对应的控制参数 β_c 随着各向异性的增加而增加,意味着所需要的温度梯度逐渐增加.变化幅度随生长速度的增加先增大后减小,且在高速区的影响更大一些.当温度梯度确定时,抽拉速度小于某一临界值使得 $v < v_c$ 时,凝

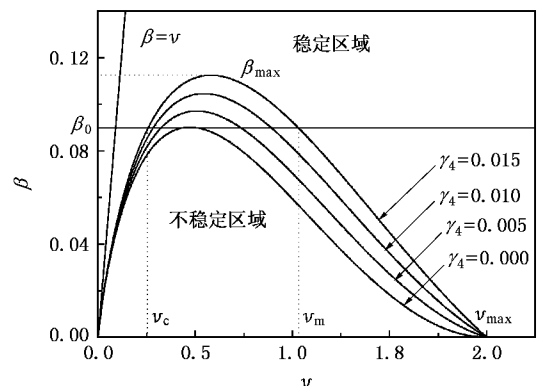


图2 $k=0.5$ 时控制参数 (v, β) 确定的稳定性区域图

固过程处于低速稳定状态;当 $v > v_c$ 时,某些扰动的振幅将随时间增加,系统处于不稳定状态,抽拉速度进一步增加使 $v > v_m$,系统为高速稳定状态.界面能各向异性使得存在不稳定区域的抽拉速度的临界值 v_c 减小, v_m 增大,不稳定区域变大甚至从无到有.从整体来说,界面能各向异性对凝固系统处于高速和高温度梯度时有明显的影响.

5. 结 论

从合金定向凝固的数学模型入手,在考虑四轴对称的界面能各向异性情况下,对稳态平界面的线性扰动系统进行多重尺度的渐近展开和单一尺度的

渐近展开,得到了统一的高阶近似色散关系.通过对控制参数的变换看出,渐近分析结果与成分过冷理论和 M-S 理论是一致的.界面能各向异性对平界面的稳定性具有明显的影响:各向异性的存在增加了系统临界稳定对应的温度梯度 β_c ,减小了低速临界稳定速度 v_c ,增大了高速临界稳定速度 v_m .总的来说,界面能的各向异性增大了凝固系统不稳定状态对应的控制参数选择范围,且对处于高速和高温度梯度区域的凝固体系有较大影响.

本文得到了南开大学应用数学系徐鉴君教授的帮助和指导,在此表示衷心感谢.

-
- [1] Lin X, Li T, Wang L L, Su Y P, Huang W D 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3971 (in Chinese) [林 鑫、李 涛、王琳琳、苏云鹏、黄卫东 2004 物理学报 **53** 3971]
- [2] Huang W D, Shang B L, Zhou Y H 1991 *Acta Phys. Sin.* **40** 323 (in Chinese) [黄卫东、商宝禄、周尧和 1991 物理学报 **40** 323]
- [3] Tiller W A, Jackson K A, Rutter J W, Chalmers B 1953 *Acta Metall.* **1** 428
- [4] Mullins W W, Sekerka R F 1963 *J. Appl. Phys.* **34** 323
- [5] Mullins W W, Sekerka R F 1964 *J. Appl. Phys.* **35** 444
- [6] Warren J A, Langer J S 1990 *Phys. Rev. A* **42** 3518
- [7] Davis S H 2001 *Theory of Solidification* (Cambridge : Cambridge University Press) p86
- [8] Coriell S R, Sekerka R F 1976 *J. Cryst. Growth* **34** 157
- [9] McFadden G B, Coriell S R, Sekerka R F 1988 *J. Cryst. Growth* **91** 180
- [10] Hoyle R B, McFadden G B, Davis S H 1996 *Phil. Trans. R. Soc. London A* **354** 2915
- [11] Golovin A A, Davis S H 1998 *Physica D* **116** 363
- [12] Xu J J 1997 *Interfacial Wave Theory of Pattern Formation : Selection of Dendrite Growth and Viscous Fingering in a Hele-Shaw Flow* (New York : Springer-Verlag) p1

The asymptotic analysis of interfacial stability with surface tension anisotropy for directional solidification of alloys^{*}

Wang Zhi-Jun Wang Jin-Cheng[†] Yang Gen-Cang

(State Key Laboratory of Solidification Processing , Northwestern Polytechnical University , Xi 'an 710072 ,China)

(Received 5 February 2007 ; revised manuscript received 19 June 2007)

Abstract

An asymptotic analysis of interfacial stability with the surface tension anisotropy is derived for directional solidification of alloys. The zero and first order solution for multi-scale and the zero order solution for single-scale are obtained. The dispersion relation adapted to all wave-length is presented by combining the short and the long wave-length solutions. It was concluded that the zero order asymptotic solution is equivalent to constitutional undercooling theory and the first order solution is consistent with M-S theory. The instability zone of control parameter enlarges with the surface tension anisotropy ,especially for the high temperature gradient and high pulling velocitycases.

Keywords : directional solidification , interfacial stability , asymptotic analysis , anisotropy

PACC : 8130F , 8110F , 6470D

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50401013) and the Scientific Research Foundation for the Returned Overseas Chinese Scholars , State Education Ministry .

[†] Corresponding author. E-mail : jchwang@nwpu.edu.cn