

# 平界面失稳初始扰动波长的选择<sup>\*</sup>

丁国陆 林 鑫 黄卫东 周尧和

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(1996 年 9 月 18 日收到; 1996 年 11 月 4 日收到修改稿)

采用典型的模型合金丁二腈-0.93% 水杨酸苯脂, 在精确的实验条件下研究了定向凝固平界面失稳初始扰动波长  $\lambda_i$  的选择. 将实验结果与 M-S 理论及 W-L 模型分别进行了系统分析和比较. 发现: (1) 在平界面失稳的临界点附近,  $\lambda_i$  的实验结果并不落在 M-S 理论所预言的波长范围内, 而在明显偏离平界面失稳的条件下,  $\lambda_i$  的实验结果尽管都选择在 M-S 理论的波长范围内, 但比该理论所预言的振幅发展速率最快的波长大数倍, 这说明 M-S 理论未能从根本上解决  $\lambda_i$  的选择问题; (2) 在不同合金系中  $\lambda_i$  的实验结果与 W-L 模型的一致程度都很好, 说明平界面失稳初始扰动波长正如 W-L 模型所预言的那样, 是凝固界面前沿的微观热起伏被有选择地充分放大的结果.

PACC: 8130F; 8110F; 6470D

## 1 引 言

平界面失稳初始扰动是形成复杂凝固界面花样的起点和初始条件, 对于凝固界面形态的稳态选择具有重要影响. 而过去在这方面的理论分析<sup>[1-3]</sup>和实验研究<sup>[4-9]</sup>没有很好地衔接. 而且, 以往大部分的实验<sup>[7-9]</sup>都是在多晶或有亚晶界的单晶中进行的, 致使所测定的平界面失稳初始扰动波长的误差很大. 文献[5, 6]的实验是在严格的无亚晶界的单晶中进行的, 但由于受实验条件的限制, 未能给出在平界面稳定性临界点附近初始扰动波长的结果. 因此, 平界面失稳初始扰动波长的选择问题至今尚未得到很好解决.

本文在严格、精确的实验条件下考察平界面失稳初始扰动波长的选择, 并将实验结果与最新的理论模型进行全面的比较和系统的分析, 以认清平界面失稳初始扰动波长选择的物理本质.

## 2 实 验

以丁二腈-0.93% 水杨酸苯脂为合金系, 在 Hunt-Jackson 型水平温度平台上进行定向凝固实验. 采用精馏再区域熔炼的方法得到纯度大于 99.99% 的丁二腈, 在真空下与分析纯的水杨酸苯脂熔合制成合金, 随后在真空或高纯氮气气氛下制备试样(试样尺寸为 200

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金资助的课题.

mm×2.0 mm×0.1 mm), 以保证合金成分的准确性; 采用滚珠丝杆传动且丝杆与试样间刚性连接, 以保证试样的运动速度精确到±0.02 μm/s; 采用恒温水浴控制热、冷台的温度, 并将直径为0.025 μm的镍铬-镍硅热电偶装在试样中精确测量温度梯度, 以获得凝固温度场的准确信息. 实验之前采用熔化法在试样盒中先形成一个无亚晶界的单晶, 每次实验都从这个品种出发, 使其一个(100)晶面与试样盒的上下表面平行, 以保证每次实验中晶体晶面性质和初始状态完全相同. 详细的实验过程见文献[10, 11].

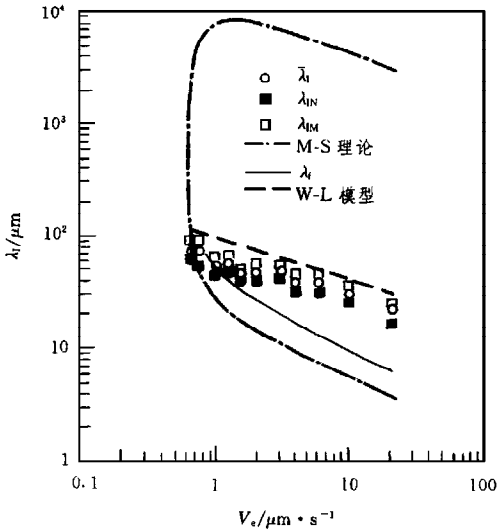


图 1 在丁二腈-0.93% 水杨酸苯脂合金中实验结果与理论模型的比较  $G_L=5.1\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm}$

实验发现, 在丁二腈-0.93% 水杨酸苯脂中, 平界面失稳初始扰动波长的产生与发展过程与文献[5]在丁二腈-1.1% 乙醇中观察到的(即文献[5]的图 1)极为相似. 即在平界面失稳的初期, 总是随机地在原先光滑的平界面的某些位置上先后产生一些振幅较小的初始扰动, 形似正弦波, 但波长并不十分均匀; 随后, 这些初始扰动会沿着界面传播, 扩展至整个界面; 并在保持波长不变的情况下不断地向前发展振幅, 直至形成振幅较大的胞晶或枝晶锥形.

在丁二腈-0.93% 水杨酸苯脂合金系中, 当  $G_L=5.1\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm}$  时, 将在不同的外部控制速度  $V_e$  下平界面失稳初始扰动波长  $\lambda_I$  的实验结果列于表 1, 其中,  $\bar{\lambda}_I$ ,  $\lambda_{IM}$  和  $\lambda_{IN}$  分别为初始扰动波长的平均值、最大值和最小值. 将实验结果作于图 1 中, 由图可见,  $\bar{\lambda}_I$ ,  $\lambda_{IM}$  和  $\lambda_{IN}$  分别随  $V_e$  增大而减小.

| 表 1 在不同的 $V_e$ 下 $\lambda_I$ 的实验结果(丁二腈-0.93 wt% 水杨酸苯脂 $G_L=5.1\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm}$ ) |      |      |      |      |      |      |      |      |       |      |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|-------|------|
| $V_e/\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$                                                                 | 0.64 | 0.73 | 0.97 | 1.55 | 2.03 | 3.06 | 4.09 | 6.14 | 10.17 | 21.5 |
| $\bar{\lambda}_I/\mu\text{m}$                                                                       | 75.4 | 73.7 | 55.0 | 46.5 | 47.5 | 48.7 | 38.0 | 38.5 | 30.0  | 23.5 |
| $\lambda_{IN}/\mu\text{m}$                                                                          | 61.0 | 53.4 | 44.0 | 41.8 | 40.1 | 42.7 | 31.6 | 31.1 | 26.0  | 16.9 |
| $\lambda_{IM}/\mu\text{m}$                                                                          | 92.8 | 91.5 | 66.7 | 51.2 | 57.6 | 56.2 | 46.7 | 48.2 | 36.1  | 25.0 |

### 3 分析与讨论

#### 3.1 与界面稳定性理论的比较

界面稳定性的线性动力学理论即 M-S 理论预言, 当平界面失稳时, 将存在一个有限的波长范围<sup>[1]</sup>

$$\lambda_m < \lambda < \lambda_M, \quad (1)$$

只有那些波长在此范围内的扰动才能出现和发展.下面考察  $\lambda_I$  的实验结果是否满足(1)式.

线性动力学理论给出的平界面失稳条件可写为

$$-\frac{1}{2}(g_S + g_L) + m_L G_C < |\max f(\lambda)|, \quad (2)$$

式中

$$\begin{aligned} g_S &= \frac{2k_S}{k_S + k_L} G_S, & g_L &= \frac{2k_L}{k_S + k_L} G_L, \\ f(\lambda) &= -T_M \Gamma(2\pi/\lambda)^2 + m_L G_C h(\lambda), \\ h(\lambda) &= \frac{-2k_0}{\sqrt{1 + (4\pi D_L/\lambda V)^2} + 2k_0 - 1}, \\ G_C &= \frac{VC_\infty(k_0 - 1)}{k_0 D_L}, \end{aligned}$$

其中,  $G_S$ ,  $G_L$  分别为固、液相中的温度梯度,  $k_S$ ,  $k_L$  分别为固、液相的导热系数,  $k_0$ ,  $D_L$  和  $C_\infty$  分别为平衡溶质分配系数、液相溶质扩散系数和远离界面处的液相溶质浓度,  $m_L$  为液相线斜率.

对于以丁二腈为基体的透明模型合金,  $k_S = k_L$ , 于是有  $g_S = g_L = \frac{1}{2} G_L$ , 所以, (2) 式可简化为

$$-G_L + m_L G_C < |\max f(\lambda)|. \quad (3)$$

对(3)式进行数值分析和计算, 即可求出  $\lambda_m$  和  $\lambda_M$ . 将计算结果示于图 1, 与实验结果比较后发现, 当  $V_e > 0.97 \mu\text{m/s}$  即  $V_e > 1.57 V_{\text{cms}}$  ( $V_{\text{cms}}$  是由 M-S 理论所给出的界面稳定性临界速度, 也由(3)式算出)时, 下式确实成立,

$$\lambda_m < \lambda_{IN} < \bar{\lambda}_I < \lambda_{IM} < \lambda_M, \quad (4)$$

而当  $V_e$  与  $V_{\text{cms}}$  很接近时, (4) 式并不成立. 这从一个侧面说明线性动力学理论所预言的平界面失稳初始扰动是不准确的, 主要是因为线性动力学理论在进行界面稳定性分析时, 人为地在平界面上强加无限小振幅的扰动. 事实上, 界面稳定性的弱非线性分析<sup>[3,4]</sup>已证明, 对于  $k_0 < 0.45$  的合金系(丁二腈-0.93% 水杨酸苯脂合金系的  $k_0 = 0.2$ ), Landau 常数  $a_1 < 0$ , 界面稳定性具有亚临界分叉的性质, 不存在从平界面到无限小振幅的连续转变. 出于同样的原因, 界面失稳的初始扰动波长的实验结果与线性动力学理论所预言的振幅发展速率最快的扰动波长  $\lambda_f$  并不一致, 两者相差数倍, 见图 1, 其中  $\lambda_f$  是通过 M-S 理论的原始文献[1]中的(20)式进行数值计算而绘出的.

再将黄卫东等<sup>[5]</sup>在丁二腈-1.1% 乙醇合金系和 Trivedi 等<sup>[6]</sup>在丁二腈-4.0% 丙酮合金系的实验结果与线性动力学理论作相应的比较, 分别示于图 2 和图 3. 可见, 实验结果也几乎都落在线性动力学理论所确定的波长范围内, 而与  $\lambda_f$  也不一致. 注意文献[5,6]只给出了当  $V_e$  明显大于  $V_{\text{cms}}$  时  $\bar{\lambda}_I$  的实验结果, 而没有给出当  $V_e$  接近  $V_{\text{cms}}$  时  $\bar{\lambda}_I$  的实验结果, 这是因为他们的实验条件不够精确, 特别是合金成分没有得到严格控制的缘故.

综合图 1—图 3 发现, 尽管实验结果大多落在线性动力学理论所确定的范围内, 但理论所给的是一个很宽的范围, 而实验结果为一个很窄的范围或相对确定的值, 并且实验结果与理论上的  $\lambda_f$  都不一致, 两者相差数倍. 这说明线性动力学理论未能从根本上解决平面失稳初始扰动波长的选择问题.

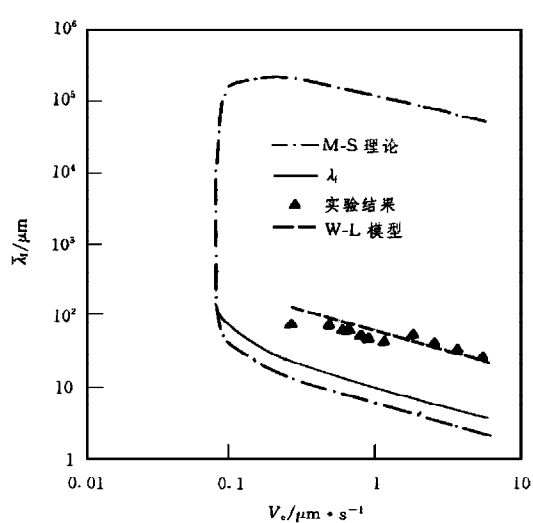


图 2 在丁二腈-1.1%乙醇合金中实验结果<sup>[5]</sup>与理论模型的比较  $G_L = 5.5\text{ }^\circ\text{C/mm}$

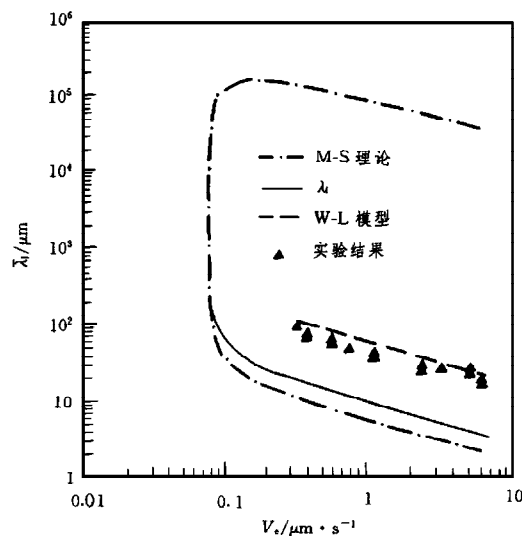


图 3 在丁二腈-4.0%丙酮合金中实验结果<sup>[6]</sup>与理论模型的比较  $G_L = 6.7\text{ }^\circ\text{C/mm}$

### 3.2 与 W-L 模型的比较

最近, Warren 和 Langer<sup>[2]</sup>在界面稳定性分析的基础上, 从界面失稳的微观机制出发, 分析了由界面前沿原子尺度的热起伏被放大而发展到界面失稳的初始扰动过程, 提出了以下模型(称为 W-L 模型):

$$\Gamma(k, t) = \Gamma_0(k) \int_{-\infty}^t dt_1 \exp \left[ 2 \int_{t_1}^t \bar{\omega}_k(t') dt' \right], \quad (5)$$

式中

$$\Gamma_0(k) = \left| \bar{\omega}_k(t=0) \right| \frac{m_L}{(1-k_0) G_L n_w A(k)},$$

其中

$$A(k) = 1 + \frac{T_M \gamma}{L G_L} k^2,$$

这里,  $\Gamma(k, t)$  为界面热扰动的振幅,  $\bar{\omega}_k(t)$  为振幅发展速率(为时间的函数, 由非稳态过程的平面稳定性分析给出),  $n_w$  为液相中单位体积的分子数,  $k$  为界面热扰动的波数 ( $k = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  为扰动波长),  $t$  为时间, (5) 式所给的  $\Gamma(k, t)$ - $k$  关系如图 4 所示. 可见, 该模型

实际上预言,只有频率在某一本征值的热起伏才会被充分放大到宏观可见的界面扰动,即平界面失稳的初始扰动波长将选择在这个本征值附近。

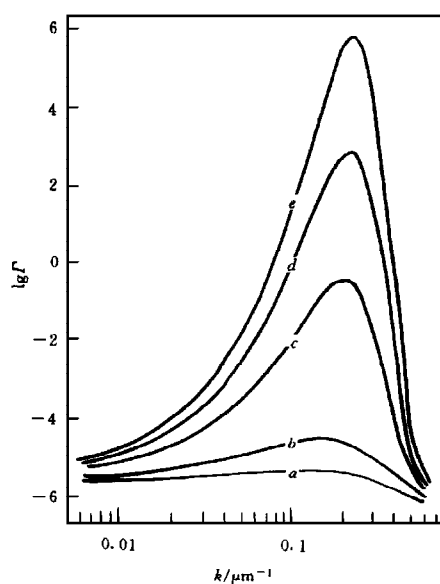


图4 W-L模型所给的  $\Gamma(k, t)$ - $k$  关系<sup>[2]</sup> 丁二腈-4.0%丙酮合金,  $V_e = 10.0 \mu\text{m/s}$ ,  $G_L = 6.7 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ , 曲线 a, b, c, d, e 分别对应  $t = 10, 30, 70, 90, 105 \text{ s}$

针对相应的实验条件,将(5)式所预言的本征波长分别作于图1—图3,与实验结果进行比较,可见W-L模型与在不同合金系中的实验结果都符合得比较好.这说明平界面失稳初始扰动确实是界面前沿的热起伏被有选择地充分放大的结果,其波长选择在W-L模型预言的本征值附近。

- [1] W. W. Mullins, R. F. Sekerka, *J. Appl. Phys.*, **34**(1964), 444.
- [2] J. A. Warren, J. S. Langer, *Phys. Rev.*, **47E**(1993), 2702.
- [3] D. J. Wollkind, L. A. Segel, *Phil. Trans. Roy. Soc.*, **268**(1970), 351.
- [4] B. Caroli, C. Caroli, B. Roulet, in: *Solids Far from Equilibrium*, ed. C. Godreche (Cambridge University Press, London, 1992), p. 235.
- [5] 黄卫东、商宝禄、周尧和, *物理学报*, **40**(1991), 323.
- [6] R. Trivedi, K. Somboonsuk, *Acta Metall.*, **53**(1985), 1061.
- [7] S. de Cheveigne, S. Guthmann, P. Kurowski, *J. Crystal Growth*, **92**(1988), 616.
- [8] Y. Miyata, T. Suzuki, J. I. Uno, *Metall. Trans.*, **16A**(1985), 1799.
- [9] R. M. Sharp, A. Hellawell, *J. Crystal Growth*, **6**(1970), 334.
- [10] G. L. Ding, W. D. Huang, X. Huang *et al.*, *Acta Metall. et Mater.*, **44**(1996), 3705.
- [11] 丁国陆, 西北工业大学博士学位论文, 1996.

## SELECTION OF INITIAL PERTURBATION WAVELENGTH OF A PLANAR SOLID-LIQUID INTERFACE

DING GUO-LU LIN XIN HUANG WEI-DONG ZHOU YAO-HE

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

(Received 18 September 1996; revised manuscript received 4 November 1996)

### ABSTRACT

A transparent model alloy, succinonitrile-0.93 wt.% salol is unidirectionally solidified under the accurately controled experimental conditions to investigate the selection of initial perturbation wavelength of a planar interface. The experimental data are compared with the Mullins-Sekerka (M-S) theory and the Warren-Langer (W-L) model. The following results are obtained: (1) Some experimental points do not lie within the wavelength range predicted by the M-S theory when  $V_{\text{cms}} < V_e < 1.57 V_{\text{cms}}$ , where  $V_e$  is the pulling velocity,  $V_{\text{cms}}$  is the critical instability velocity of a planar interface given by M-S theory. When  $V_e \gg 1.57 V_{\text{cms}}$ , the experimental points are all within the wavelength range, but several times larger than the wavelength with the fastest amplitude developing speed predicted by the M-S theory. In short, the M-S theory cannot be used effectively to predict the selection of the initial perturbation wavelength of a planar interface. (2) The experimental results obtained in different alloys are all in good agreement with the W-L model, which proves that the initial perturbation of a planar interface is generated by the dramatic amplification of the ambient thermal micro-fluctuation with a characteristic wavelength.

PACC: 8130F; 8110F; 6470D