

# 单相合金凝固过程时间相关的 界面稳定性(I)\*

## 理论分析

林 鑫 李 涛 王琳琳 苏云鹏 黄卫东

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2003 年 10 月 20 日收到, 2004 年 5 月 4 日收到修改稿)

对定向凝固界面前沿非稳态溶质扩散场进行了系统的对比分析,发现无论在纯扩散还是存在对流的情况下,界面前沿的溶质扩散场通常满足指数分布的形式,可以采用一个统一的公式来描述界面前沿的瞬态溶质扩散场.进而在此基础上,对定向凝固界面形态稳定性进行了统一的时间相关的非稳态分析,发现界面临界稳定性条件的数学描述形式与 Mullins 和 Sekerka 理论给出的稳态解完全一致,只是用时间相关的浓度梯度  $G_c^*$ 、界面速度  $V_i$ 、溶质扩散长度  $l$  代替了稳态生长中所得到的  $G_c, V, D_L/V$ .

关键词: 界面稳定性, 时间相关, 扩散, 对流

PACC: 8130F, 8110F, 6470D

## 1. 引 言

界面稳定性是晶体生长和金属凝固形成复杂凝固花样的起点,对界面失稳后凝固界面形态演化和选择具有重要的影响.关于界面稳定性较为系统的理论分析,最早起源于“成分过冷”理论<sup>[1]</sup>,而更为全面的分析且为目前大多数研究者广泛运用的则当属 Mullins 和 Sekerka 发展的界面稳定性理论(MS 理论)<sup>[2]</sup>,MS 理论已成为人们理解从低速平界面到绝对稳定性之间凝固亚结构演化的一个重要基础.从表面上看,低速平界面稳定性似乎已经由 MS 理论很好地解决了.然而,MS 理论的分析是建立在界面前沿稳态溶质扩散场的基础上,而凝固界面在生长过程中,其界面前沿的溶质扩散场不可能迅速达到稳态,其达到稳态所需的时间近似与凝固速度的平方成反比<sup>[1,3,4]</sup>,特别在低速平界面发展时,很可能直到界面失稳时,界面前沿的稳态溶质扩散场还无法建立.实验结果表明,平界面失稳实际上具有明显的时间相关特性<sup>[5]</sup>,而且凝固组织的最终形态选择与其时间相关的历史密切相关<sup>[6-9]</sup>.基于此,Warren 和

Langer<sup>[10]</sup>于 1993 年首次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,并描绘出了空间扰动尺度的时间发展行为,不过他们的分析仅限于溶质的纯扩散过程,忽视了对流对初始溶质再分配影响.由此可见,把凝固界面形态稳定性理论分析准确地建立非稳态溶质再分配的基础之上,对于深刻地理解凝固界面演化的时间及历史相关特性显得尤为必要.

本文在对纯扩散和存在对流情况下的非稳态溶质再分配进行系统分析的基础上,对凝固界面形态稳定性进行了统一的时间相关的非稳态分析.

## 2. 初始溶质扩散场

定向凝固界面前沿非稳态溶质扩散场的演化问题实际上是一个较为复杂的 Stefan 问题,目前尚未发现准确的分析解.当前的大部分研究工作都是在对凝固系统做了一定近似的前提下进行的分析.1953 年, Tiller 等人<sup>[1]</sup>首次在采用准静态近似和假定界面速度为常数的前提下,给出了纯扩散条件下该

\* 国家高技术研究发展计划(批准号: 2002AA336050)和国家自然科学基金(批准号: 50201012 和 50071048)资助的课题.

问题的近似解. 随后, Smith<sup>[3]</sup>在假定界面速度为常数的前提下, 对该问题进行了严格的数学分析, 获得了一个数学上非常严格且复杂的解析解. 在相当长的一段时间里, Smith 解一直被认为是纯扩散条件下非稳态溶质再分配的准确解, 同时 Tiller 解因为给出了与 Smith 解近似的结果而被认为是一个相当好的近似解. Tiller 解和 Smith 解都是基于一个相同的假设, 即认为凝固界面的生长速度从始至终都保持常数, 并等于试样的抽拉速度. 然而实际上, 由于凝固初始界面前沿溶质富集造成的界面平衡熔点降低所引起的界面生长滞后, 使得界面生长速度不可能迅速达到试样的抽拉速度, 因此界面生长速度不可能从初始就达到试样的抽拉速度, 而只可能在温度场和溶质场的耦合作用下逐步达到<sup>[5,11]</sup>. 针对这个问题, Huang 等人<sup>[4]</sup>在 Tiller 解的基础上, 通过考虑凝固初始界面生长的滞后效应, 发展了一个界面前沿溶质再分配准稳态近似解. 1993 年, Warren 和 Langer<sup>[10]</sup>在同时考虑界面的滞后效应及溶质扩散长度的非稳态效应的基础上提出了一个更为细致的溶质再分配半解析数值模型, 认为界面前沿的溶质扩散场可由下式表示:

$$C_L(z, t) = C_0 + (C_i - C_0) \exp\left(-\frac{z}{l}\right), \quad z \geq 0, \quad (1)$$

式中  $z$  为液相中离开液固界面的距离,  $C_0$  为合金平均成分,  $C_i$  为界面上的液相溶质浓度,  $l$  为时间相关的溶质扩散长度, 可由以下微分方程组来确定:

$$\dot{C}_i = \frac{G_T}{m_0} \left[ \frac{D_L(C_i - C_0)}{lC_L(1 - k_0)} - V_p \right], \quad (2)$$

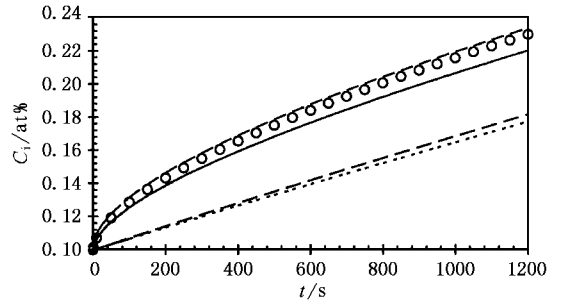
$$l = \frac{V_L(C_0 - k_0 C_i) - l\dot{C}_i}{(C_i - C_0)}, \quad (3)$$

$$V_i = \frac{D_L(C_i - C_0)}{lC_L(1 - k_0)}, \quad (4)$$

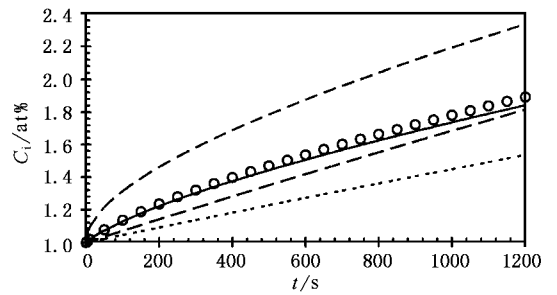
式中  $D_L$  为液相溶质扩散系数,  $k_0$  为平衡溶质分配系数,  $m_0$  为液相线斜率,  $V_p$  为试样的抽拉速度,  $G_T$  为液相温度梯度,  $\dot{C}_i$  和  $l$  分别为相关参量对时间的导数.

图 1 和图 2 比较了上述不同扩散解与在纯扩散条件下通过数值计算所获得的凝固界面前沿非稳态扩散场. 图 1 和图 2 涵盖了三种典型的定向凝固情况, 即  $\Delta T_0/G_T$  较小(图 1(a)和图 2(a)), 中等(图 1(b)和图 2(b)), 较大(图 1(c)和图 2(c)), 其中  $\Delta T_0$  为平衡结晶温度间隔. 由图中可以看出, Warren-Langer 近似解在各种条件下都与严格的数值解符合得很

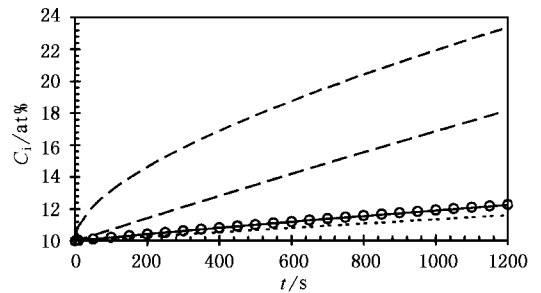
好, 而其他解只是在某些条件下与数值解接近, 在另一些条件下就相差很远, 甚至完全不能用. 可见, 界面速度的滞后效应和扩散长度随时间的变化对非稳态溶质再分配具有重要的影响, 尤其是随着  $\Delta T_0/G_T$  的增大, 这些影响越趋显著, 若忽略这两个因素, 则在多数情况下会导致很大偏差. 可见, Warren-Langer 解是在纯扩散条件下适用于大多数情况的一个最好的近似解.



(a)  $C_0 = 0.1at\%$



(b)  $C_0 = 1at\%$



(c)  $C_0 = 10at\%$

图 1 界面溶质浓度随时间的变化规律 SCN-Acc(丁二腈  $C_2H_4(CN)_2$ -丙酮  $CH_3COCH_3$ )合金,  $G_T = 5K/mm$ ,  $V_p = 1\mu m/s$ . - - - 取自 Tiller 的数据, ———取自 Smith 的数据, ..... 取自 Huang 的数据, ———取自 Warren 的数据, ○ 为计算结果

需要说明的是, 上述所提及各模型描述的溶质场皆为在纯扩散条件下进行分析获得的, 而在地面实验中, 由于合金的密度通常要随温度及溶质浓度

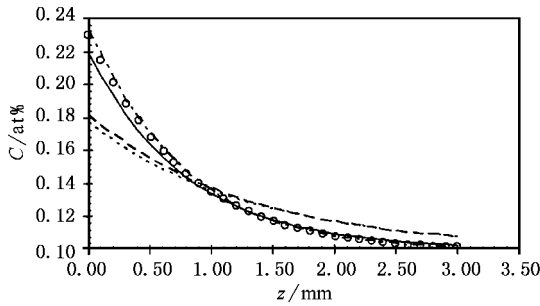
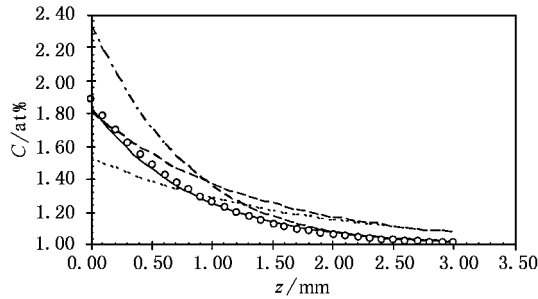
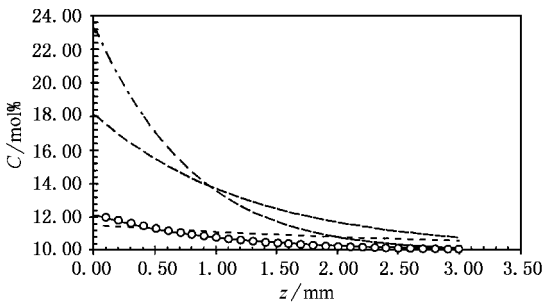
(a)  $C_0 = 0.1\text{at}\%$ (b)  $C_0 = 1\text{at}\%$ (c)  $C_0 = 10\text{at}\%$ 

图2 定向凝固开始 1200s 时界面前沿溶质场分布 SCN-AcC(丁二腈  $\text{C}_2\text{H}_4(\text{CN})_2$ -丙酮  $\text{CH}_3\text{COCH}_3$ )合金,  $G_T = 5\text{K/mm}$ ,  $V_p = 1\mu\text{m/s}$ . 曲线说明同图 1

的改变而变化,受重力的影响,界面前沿的液相对流通常不可避免,同时许多其他因素也会导致对流发生,如 Marangoni 对流、电磁搅动等,而对流的存在将显著影响界面前沿的溶质传输机理.1953 年, Burton 等人<sup>[12]</sup>在对液相对流作用下溶质扩散场进行分析时,首次引入了溶质扩散边界层的概念,认为在扩散边界层内,只有纯溶质扩散在起作用,而在边界层之外,由于对流的充分搅动,将保持一个均匀的溶质场分布.1981 年, Favier<sup>[13]</sup>在考虑液相区长度对扩散边界层的影响及试样末端效应的影响的基础上,进一步发展和完善了 Burton 等人的模型,提出了一个更

为通用的模型.不过,以上这些对流扩散解与 Tiller 解和 Smith 解一样,同样都未考虑界面生长的滞后效应.

最近,我们在 Warren-Langer 解和扩散边界层近似的基础上,通过考虑界面生长速度的滞后效应及时间相关的扩散长度  $l$ ,发展了一个对流作用下溶质的再分配半解析数值模型<sup>[14]</sup>,其中界面前沿的非稳态扩散解可由下式确定:

$$\begin{cases} C_i(z, t) = \frac{C_\delta - C_i \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right) + (C_i - C_\delta) \exp\left(-\frac{z}{l}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)}, & 0 \leq z \leq \delta, \\ C_i(z, t) = C_\delta, & z \geq \delta, \end{cases} \quad (5)$$

式中  $\delta$  为扩散边界层厚度,时间相关的  $C_i$ ,  $C_\delta$  和  $l$  由以下联立微分方程组确定:

$$\dot{C}_i = \frac{G_T}{m} \left[ \frac{D(C_i - C_\delta)}{lC_i(1 - k_0) \left(1 - \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)\right)} - V_p \right], \quad (6)$$

$$\dot{C}_\delta = \frac{V_i C_i (1 - k_0) \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)}{L - \delta - V_p t - \frac{m}{G_T}(C_i - C_0)}, \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \dot{l} = & \left\{ V_i \left( C_\delta - k_0 C_i - C_i (1 - k) \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right) \right) \right. \\ & - \left( \frac{\delta}{1 - \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)} - l \right) \dot{C}_\delta \\ & \left. - \left[ l - \frac{\delta \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)} \right] \dot{C}_i \right\} \\ & \times \left\{ (C_i - C_0) \left[ 1 - \frac{\delta^2 \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)}{l^2 \left(1 - \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)\right)^2} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (8)$$

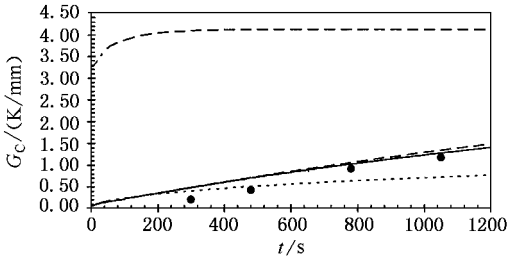
$$V_i = \frac{D(C_i - C_0)}{lC_i(1 - k_0) \left(1 - \exp\left(-\frac{\delta}{l}\right)\right)}, \quad (9)$$

式中  $L$  为试样长度.在该模型中,当  $\delta \rightarrow \infty$ ,  $L \rightarrow \infty$  时,该模型将回到 Warren-Langer 扩散解,而当  $t \rightarrow \infty$  时,该模型与 Burton 等人所获得的对流作用下的稳态扩散解一致.图 3 将 Favier 解和我们所获得的半解析数值模型与 Inatomi 在 SCN(丁二腈)-10at% Ace(丙酮)和 SCN(丁二腈)-6.5at% Ace(丙酮)定向凝固中所获得的实验结果<sup>[15]</sup>作了对比,边界层厚度  $\delta$  取

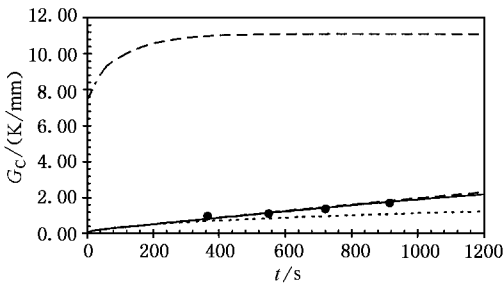
其实验测量值.可以看出,我们的模型与实验结果符合很好,尤其是当  $L$  取其实验中的实际试样长度 20mm 时,符合程度更加完美,而 Favier 解则与实验结果存在较大偏差.

值得指出的是,上述不同初始溶质扩散场模型所得到的时间相关的溶质场分布的表达式多有差别,但都存在一个共同点,即不论纯扩散还是界面前沿存在对流,界面前沿的溶质扩散场满足指数分布的形式.并且由以上各扩散解模型可以很方便地获得界面前沿瞬时扩散长度  $l$ 、瞬时界面溶质浓度  $C_i$ 、瞬时界面溶质浓度梯度  $G_C^l$ .因此,考虑时间相关的溶质扩散长度  $l$ ,建立一固连于液固界面的运动坐标系,界面前沿的瞬时溶质扩散场可表示为

$$C_L(z, t) = A + B \exp\left(-\frac{z}{l}\right). \quad (10)$$



(a) SCN(丁二腈)-10at% Ace(丙酮),  $G_L = 2.37\text{K/mm}$ ,  $V_p = 1.05\mu\text{m/s}$ ,  $\delta = 470\text{--}550\mu\text{m}$



(b) SCN(丁二腈)-6.5 at% Ace(丙酮),  $G_L = 2.37\text{K/mm}$ ,  $V_p = 0.70\mu\text{m/s}$ ,  $\delta = 400\text{--}500\mu\text{m}$

图3 界面溶质浓度梯度的时间相关性 ——为 Favier 的数据, .....为 Warrer 的数据, - - - 为  $L$  为无限长, ——为  $L = 20\text{mm}$ , ○为实验结果

为了确定(10)式中系数  $A, B$ ,使用如下界面边界条件:

$$C_L(0, t) = C_i, \quad (11)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} C_L(0, t) = G_C^l, \quad (12)$$

可得到

$$C_L(z, t) = C_i + lG_C^l \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{l}\right)\right). \quad (13)$$

同理,液固相中的温度场可表示为

$$T_L(z, t) = T_i + l_{TL} G_{TL} \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{l_{TL}}\right)\right), \quad (14)$$

$$T_S(z, t) = T_i + l_{TS} G_{TS} \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{l_{TS}}\right)\right), \quad (15)$$

式中  $T_i$  为界面温度,  $l_{TL}, l_{TS}$  分别为液固相中的热扩散长度,  $G_{TL}, G_{TS}$  分别为液固相中的温度梯度.

### 3. 时间相关的界面稳定性分析

基于局域平衡假设,界面上的温度和浓度耦合于合金相图,在假设合金的固液相线为直线的前提下,得

$$T_i = T_m + m_0 C_i, \quad (16)$$

式中  $T_m$  为纯溶剂平界面生长时的界面温度.

采用与 MS 理论相似的线性稳定性分析方法,首先考虑在未受干扰的情况下,界面恒为平面,其界面方程为

$$\mathcal{L}(0, t) = 0. \quad (17)$$

在界面遭到几何干扰后,由于界面上出现的任何周期性扰动都可展开为傅里叶级数,界面方程可表示为

$$z_s = \mathcal{L}(x, 0, t) = \epsilon(t) \sin \omega x, \quad (18)$$

式中  $\epsilon(t)$  为扰动振幅,为一无穷小量,  $\omega$  为扰动频率,  $\omega = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  为扰动波长.

当界面受到几何干扰时,必然在界面附近引起局部温度场和浓度场的变化,由于扰动振幅相当小,温度扰动和浓度扰动可表示为

$$\tilde{C}_L(x, z, t) = C_{L1}(z, t) \sin \omega x, \quad (19)$$

$$\tilde{T}_S(x, z, t) = T_{S1}(z, t) \sin \omega x, \quad (20)$$

$$\tilde{T}_L(x, z, t) = T_{L1}(z, t) \sin \omega x, \quad (21)$$

式中  $C_{L1}, T_{S1}, T_{L1}$  为相应扰动振幅,忽视固相溶质扩散.因此,扰动后的液相中的溶质场、固液相中的温度场可表示为

$$\begin{aligned} C_L(x, z, t) &= C_L(z, t) + \tilde{C}_L(x, z, t) \\ &= C_i + lG_C^l \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{l}\right)\right) \\ &\quad + C_{L1}(z, t) \sin \omega x, \end{aligned} \quad (22)$$

$$\begin{aligned} T_L(x, z, t) &= T_L(z, t) + \tilde{T}_L(x, z, t) \\ &= T_i + l_{TL} G_{TL} \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{l_{TL}}\right)\right) \end{aligned}$$

$$+ T_{\text{Li}}(z, t) \sin \omega x, \quad (23)$$

$$\begin{aligned} T_{\text{S}}(x, z, t) &= T_{\text{S}}(z, t) + \tilde{T}_{\text{S}}(x, z, t) \\ &= T_{\text{i}} + l_{\text{TS}} G_{\text{TS}} \left( 1 - \exp\left(-\frac{z}{l_{\text{TS}}}\right) \right) \\ &\quad + T_{\text{Si}}(z, t) \sin \omega x. \end{aligned} \quad (24)$$

由于扰动本身受热和溶质扩散场支配,因而扰动后的温度场和浓度场必然也应满足时间相关的溶质及温度扩散控制方程

$$\frac{\partial C_{\text{L}}}{\partial t} = D_{\text{L}} \left( \frac{\partial^2 C_{\text{L}}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_{\text{L}}}{\partial z^2} \right) + V_{\text{i}} \frac{\partial C_{\text{L}}}{\partial z}, \quad (25)$$

$$\frac{\partial T_{\text{L}}}{\partial t} = \alpha_{\text{L}} \left( \frac{\partial^2 T_{\text{L}}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_{\text{L}}}{\partial z^2} \right) + V_{\text{i}} \frac{\partial T_{\text{L}}}{\partial z}, \quad (26)$$

$$\frac{\partial T_{\text{S}}}{\partial t} = \alpha_{\text{S}} \left( \frac{\partial^2 T_{\text{S}}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_{\text{S}}}{\partial z^2} \right) + V_{\text{i}} \frac{\partial T_{\text{S}}}{\partial z}, \quad (27)$$

式中  $\alpha_{\text{L}}, \alpha_{\text{S}}$  分别为液固相中的导温系数,  $V_{\text{i}}$  为时间相关的界面生长速度. 将(22)~(24)式代入以上控制方程,采用分离变量法,求解以上微分方程,可得扰动后的浓度场和温度场为

$$\begin{aligned} C_{\text{L}}(x, z, t) &= C_{\text{i}} + l G_{\text{C}}^{\text{i}} \left( 1 - \exp\left(-\frac{z}{l}\right) \right) \\ &\quad + (b - G_{\text{C}}^{\text{i}}) \epsilon(t) \exp(-\omega^* z) \sin \omega x, \end{aligned} \quad (28)$$

$$\begin{aligned} T_{\text{L}}(x, z, t) &= T_{\text{i}} + l_{\text{TL}} G_{\text{TL}} \left( 1 - \exp\left(-\frac{z}{l_{\text{TL}}}\right) \right) \\ &\quad + (a - G_{\text{TL}}) \epsilon(t) \exp(-\omega_{\text{TL}}^* z) \sin \omega x, \end{aligned} \quad (29)$$

$$\begin{aligned} T_{\text{S}}(x, z, t) &= T_{\text{i}} + l_{\text{TS}} G_{\text{TS}} \left( 1 - \exp\left(-\frac{z}{l_{\text{TS}}}\right) \right) \\ &\quad + (a - G_{\text{TS}}) \epsilon(t) \exp(\omega_{\text{TS}}^* z) \sin \omega x, \end{aligned} \quad (30)$$

式中

$$\omega^* = \frac{V_{\text{i}}}{2D_{\text{L}}} + \left[ \left( \frac{V_{\text{i}}}{2D_{\text{L}}} \right)^2 + \omega^2 + \frac{B}{D_{\text{L}}} \right]^{1/2}, \quad (31)$$

$$\omega_{\text{TL}}^* = \frac{V_{\text{i}}}{2\alpha_{\text{L}}} + \left[ \left( \frac{V_{\text{i}}}{2\alpha_{\text{L}}} \right)^2 + \omega^2 + \frac{B}{\alpha_{\text{L}}} \right]^{1/2}, \quad (32)$$

$$\omega_{\text{TS}}^* = -\frac{V_{\text{i}}}{2\alpha_{\text{S}}} + \left[ \left( \frac{V_{\text{i}}}{2\alpha_{\text{S}}} \right)^2 + \omega^2 + \frac{B}{\alpha_{\text{S}}} \right]^{1/2}, \quad (33)$$

式中  $B = \dot{\epsilon}/\epsilon$ ,  $a, b$  为待定系数,可通过其他边值条件确定.

将上式的指数项按泰勒级数展开,略去高阶项,将扰动后的界面方程(18)代入,可得扰动后的界面浓度和温度为

$$\tilde{C}_{\text{i}} = C_{\text{i}} + b \epsilon(t) \sin \omega x, \quad (34)$$

$$\tilde{T}_{\text{i}} = T_{\text{i}} + a \epsilon(t) \sin \omega x. \quad (35)$$

基于局域平衡假设和合金相图,根据 Gibbs-Thomson 关系,界面温度  $\tilde{T}_{\text{i}}$  满足

$$\tilde{T}_{\text{i}} = T_{\text{m}} + m_0 \tilde{C}_{\text{i}} - \Gamma K, \quad (36)$$

式中  $K$  为界面曲率. 根据扰动后的界面方程,略去高阶微量,可得

$$K = \frac{\frac{\partial^2 z_{\text{S}}}{\partial x^2}}{\left[ 1 + \left( \frac{\partial z_{\text{S}}}{\partial x} \right)^2 \right]^{3/2}} \approx \omega^2 \epsilon(t) \sin(\omega x). \quad (37)$$

将(34)~(35)和(37)式代入(36)式,令对应傅里叶系数项相等,可得

$$a = m_0 b - \Gamma \omega^2. \quad (38)$$

为了求解系数  $a, b$ ,利用界面处的能量守恒和质量守恒条件

$$\begin{aligned} V(x) &= \frac{1}{L_{\text{V}}} \left[ k_{\text{S}} \left( \frac{\partial T_{\text{S}}}{\partial z} \right)_{z=z_{\text{S}}} - k_{\text{L}} \left( \frac{\partial T_{\text{L}}}{\partial z} \right)_{z=z_{\text{S}}} \right] \\ &= \frac{D_{\text{L}}}{\tilde{C}_{\text{i}}(k_0 - 1)} \left( \frac{\partial C_{\text{L}}}{\partial z} \right)_{z=z_{\text{S}}}, \end{aligned} \quad (39)$$

式中  $V(x)$  为扰动后的界面生长速率,  $L_{\text{V}}$  为熔化潜热,  $k_{\text{L}}, k_{\text{S}}$  分别为液固相的热扩散系数. 对(28)~(30)式求导,将其代入(39)式,令对应傅里叶系数项相等,可得

$$b = \frac{b_1}{b_2}, \quad (40)$$

式中

$$\begin{aligned} b_1 &= \left[ \Gamma \omega^2 (k_{\text{S}} \omega_{\text{TS}} + k_{\text{L}} \omega_{\text{TL}}) \right. \\ &\quad + (k_{\text{S}} G_{\text{TS}} \omega_{\text{TS}} + k_{\text{L}} G_{\text{TL}} \omega_{\text{TL}}) \\ &\quad + \left( \frac{k_{\text{S}} G_{\text{TS}}}{l_{\text{TS}}} - \frac{k_{\text{L}} G_{\text{TL}}}{l_{\text{TL}}} \right) \\ &\quad \left. + V_{\text{i}} L_{\text{V}} \left( \omega - \frac{1}{l} \right) \right] G_{\text{C}}^{\text{i}}, \end{aligned} \quad (41)$$

$$\begin{aligned} b_2 &= (k_{\text{S}} G_{\text{TS}} - k_{\text{L}} G_{\text{TL}}) \left[ \omega - \frac{V_{\text{i}}}{D_{\text{L}}} (1 - k) \right] \\ &\quad + m G_{\text{C}}^{\text{i}} (k_{\text{S}} \omega_{\text{TS}} + k_{\text{L}} \omega_{\text{TL}}). \end{aligned} \quad (42)$$

将  $V(x) = V_{\text{i}} + \delta \sin \omega x$  代入(39)式,令对应傅里叶系数项相等,可得

$$V_{\text{i}} = (k_{\text{S}} G_{\text{TS}} - k_{\text{L}} G_{\text{TL}}) / L_{\text{V}}, \quad (43)$$

$$\begin{aligned} \frac{\delta}{\dot{\delta}} &= \frac{1}{L_{\text{V}}} \left\{ k_{\text{S}} \left[ \omega_{\text{TS}} a - G_{\text{TS}} \left( \omega_{\text{TS}} + \frac{1}{l_{\text{TS}}} \right) \right] \right. \\ &\quad \left. + k_{\text{L}} \left[ \omega_{\text{TL}} a - G_{\text{TL}} \left( \omega_{\text{TL}} + \frac{1}{l_{\text{TL}}} \right) \right] \right\}. \end{aligned} \quad (44)$$

将(38)式代入(44)式,可得

$$\begin{aligned} \frac{\delta}{\delta} = & \frac{V_i}{b_2} \left\{ -\Gamma \omega^2 (k_S \omega_{TS} + k_L \omega_{TL}) \right. \\ & \times \left[ \omega - \frac{V_i}{D_L} (1 - k) \right] - \left( k_S G_{TS} \omega_{TS} + k_L G_{TL} \omega_{TL} \right. \\ & \left. + \frac{k_S G_{TS}}{l_{TS}} - \frac{k_L G_{TL}}{l_{TL}} \right) \left[ \omega - \frac{V_i}{D_L} (1 - k) \right] \\ & \left. + m G_C^l (k_S \omega_{TS} + k_L \omega_{TL}) \left( \omega - \frac{1}{l} \right) \right\}. \quad (45) \end{aligned}$$

界面稳定性即取决于  $\delta/\delta$  的符号, 由于

$$\left( V_i/b_2 \right) \left[ k_S \omega_{TS} + k_L \omega_{TL} \right] \omega - \left( V_i/D_L \right) \left[ 1 - k \right]$$

恒为正, 令

$$\begin{aligned} \mathcal{S}(\omega) = & -\Gamma \omega^2 - \frac{1}{k_S \omega_{TS} + k_L \omega_{TL}} \\ & \times \left[ k_S G_{TS} \left( \omega_{TS} + \frac{1}{l_{TS}} \right) \right. \\ & \left. + k_L G_{TL} \left( \omega_{TL} - \frac{1}{l_{TL}} \right) \right] \\ & + m G_C^l \frac{\omega - \frac{1}{l}}{\omega - \frac{V_i}{D_L} (1 - k)}, \quad (46) \end{aligned}$$

设

$$\begin{aligned} \bar{k}_L &= k_L (k_S + k_L), \\ \bar{k}_S &= k_S (k_S + k_L) \end{aligned}$$

和

$$\begin{aligned} \xi_C &= \left[ \omega - (1/l) \right] \left[ \omega - (V_i/D_L) (1 - k) \right], \\ \xi_L &= \left[ \omega_{TL} - (1/l_{TL}) \right] \left[ \bar{k}_S \omega_{TS} + \bar{k}_L \omega_{TL} \right], \\ \xi_S &= \left[ \omega_{TS} + (1/l_{TS}) \right] \left[ \bar{k}_S \omega_{TS} + \bar{k}_L \omega_{TL} \right], \end{aligned}$$

可得临界稳定性条件为

$$\begin{aligned} \mathcal{S}(\omega) = & -\Gamma \omega^2 - (\bar{k}_L G_L \xi_L + \bar{k}_S G_S \xi_S) + m G_C^l \xi_C \\ & = 0. \quad (47) \end{aligned}$$

由于对于任何实际生长系统通常有  $\alpha_L \omega \gg V_i$ ,

$$\alpha_S \omega \gg V_i, \text{ 以及 } \left| \frac{B}{\alpha_L} \right| \ll \omega^2, \left| \frac{B}{\alpha_S} \right| \ll \omega^2, \text{ 由(32)和(33)}$$

式有  $\omega_{TL}^* \approx \omega_{TS}^* \approx \omega$ , 同时, 由于通常热扩散系数比溶质扩散系数高 2—3 个数量级, 在本问题中, 可认为

热平衡可瞬时建立, 因此, 可得

$$\left| \frac{1}{l_{TS} \omega_{TS}^*} \right| \approx \frac{V_i}{\alpha_S \omega} \ll 1$$

及

$$\left| \frac{1}{l_{TL} \omega_{TL}^*} \right| \approx \frac{V_i}{\alpha_L \omega} \ll 1, \quad \xi_L = \xi_S = 1,$$

则由(45)式可得

$$\begin{aligned} \frac{\dot{\epsilon}}{\epsilon} = & V_i \omega \left\{ -2\Gamma \omega^2 \left( \omega^* - \frac{V_i}{D_L} (1 - k_0) \right) \right. \\ & - (\bar{k}_L G_{TL} + \bar{k}_S G_{TS}) \left( \omega^* - \frac{V_i}{D_L} (1 - k_0) \right) \\ & \left. + 2m_0 G_C^l \left( \omega^* - \frac{1}{l} \right) \right\} \left\{ 2m_0 G_C^l \omega \right. \\ & \left. + (\bar{k}_S G_{TS} - \bar{k}_L G_{TL}) \left[ \omega^* - \frac{V_i}{D_L} (1 - k_0) \right] \right\}^{-1}, \quad (48) \end{aligned}$$

临界稳定性条件则变为

$$\begin{aligned} \mathcal{S}(\omega) = & -\Gamma \omega^2 - [\bar{k}_L G_{TL} + \bar{k}_S G_{TS}] \\ & + m_0 G_C^l \frac{\omega^* - \frac{1}{l}}{\omega^* - \frac{V_i}{D_L} (1 - k_0)}. \quad (49) \end{aligned}$$

可以看出, 上式与 MS 理论所获得的扰动的单位振幅变化率的表达式在形式上完全一致, 只不过是用时间相关的  $G_C^l, V_i, l$  和  $\omega^*$  代替了稳态生长中所得到的  $G_C, V, D_L/V$  和  $\omega^*$ . 由于  $G_C^l, \omega^*$  和  $l$  皆为时间相关的, 可知  $\mathcal{S}(\omega)$  也是时间相关的, 即界面稳定性具有时间相关特性.

## 4. 结 论

基于非稳态溶质再分配模型, 对纯扩散和存在对流情况下的界面形态稳定性进行了统一的时间相关的非稳态分析, 其数学描述形式与 MS 理论给出的稳态解完全一致, 只是用时间相关的  $G_C^l, V_i, l$  和  $\omega^*$  代替了稳态生长中所得到的  $G_C, V, D_L/V$  和  $\omega^*$ .

[1] Tiller W A, Jackson K A, Rutter J W and Chalmers B 1953 *Acta Metall.* **1** 428

[2] Mullins W W and Sekerka R F 1964 *J. Appl. Phys.* **35** 444

[3] Smith V G, Tiller W A and Rutter J W 1955 *Can. J. Phys.* **33** 723

[4] Huang W D, Wei Q M and Zhou Y H 1990 *J. Cryst. Growth* **100** 26

[5] Huang W D and Zhou Y H 1991 *Acta Metall. Sin.* **A 4** 310

[6] Huang W D, Shang B L and 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

[7] Huang W D, Geng X G and Zhou Y H 1993 *J. Cryst. Growth* **134** 105

- [ 8 ] Ding G L , Huang W D , Huang X , Lin X and Zhou Y H 1996 *Acta Metall.* **44** 3705
- [ 9 ] Ding G L , Lin X , Huang W D and Zhou Y H 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 1243( in Chinese ) 丁国陆、林 鑫、黄卫东、周尧和 1997 *物理学报* **46** 1243 ]
- [ 10 ] Warren J A and Langer J S 1993 *Phys. Rev. E* **47** 2702
- [ 11 ] Eshelman M A and Trivedi R 1987 *Acta Metall.* **35** 2443
- [ 12 ] Burton J A , Prim R C and Slichter W P 1953 *J. Chem. Phys.* **21** 1987
- [ 13 ] Favier J J 1981 *Acta Metall.* **29** 197
- [ 14 ] Huang W D , Inatomi Y and Kuribayashi K 1997 *J. Cryst. Growth* **182** 212
- [ 15 ] Inatomi Y , Miyashita H , Sato E , Kuribayashi K , Itonaga K and Motegi T 1993 *J. Cryst. Growth* **130** 85

## Time-dependent interface stability during directional solidification of a single phase alloy( I )<sup>\*</sup>

### Theoretical

Lin Xin Li Tao Wang Lin-Lin Su Yun-Peng Huang Wei-Dong

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

( Received 20 October 2003 ; revised manuscript received 4 May 2004 )

#### Abstract

The initial transient solute redistribution during directional solidification is systematically investigated by carefully comparing the current theoretical models with experimental results. It is shown that at the transient front solute redistribution generally meets an exponential profile no matter whether there exists liquid convection or pure diffusion in front of the liquid/solid interface. The profile can be described by a unified formula. Based on this , a general time-dependent linear dynamic analysis of the morphological instability of a solidifying planar interface during directional solidification is carried out. It is found that the time-dependent instability solution has the same form as the steady-state solution described by Mullins and Sekerka , but the time-dependent concentration gradient  $G_C^t$  , interface velocity  $V_i$  and diffusion length  $l$  should replace the corresponding steady-state concentration gradient  $G_C$  , interface velocity  $V$  , diffusion length  $D_L/V$  in Mullins and Sekerka solution.

**Keywords** : interface stability , time-dependent , diffusion , convection

**PACC** : 8130F , 8110F , 6470D

<sup>\*</sup> Project supported by the National High Technology Development Program of China ( Grant No. 2002AA336050 ) , and the National Natural Science Foundation of China( Grant Nos. 50201012 and 50071048 ).