УДК 548.232.4

ОБЛАСТЬ УСТОЙЧИВОСТИ ВОЗМУЩЕННОГО СОСТОЯНИЯ ЛИНИИ РОСТА ДЕНДРИТА В ГЛУБОКО ПЕРЕОХЛАЖДЕННОМ РАСПЛАВЕ

О. Н. ШАБЛОВСКИЙ

Учреждение образования «Гомельский государственный технический университет имени П. О. Сухого», Республика Беларусь

Рассмотрен дендритный рост кристалла из глубоко (до 300 К) переохлажденного расплава чистого металла. В качестве примера обсуждаются свойства расплавов никеля и меди. Исходное уравнение фазовой границы кристаллизации учитывает локально-неравновесные свойства теплопереноса в твердой фазе и определяет кинетику роста в окрестности вершины дендрита. Показано, что устойчивый режим эволюции вершины в значительной степени зависит от характера возмущения кривизны и угла заострения линии роста. Установлено, что волновые процессы на фронте кристаллизации детерминированы двумя «скоростями звука», существенно зависящими от переохлаждения расплава. Выполнен анализ динамических свойств устойчивости/неустойчивости при различных величинах скорости бегущей волны возмущения. Рассмотрены дозвуковые, звуковые и сверхзвуковые режимы распространения волн. Вычислены частота возбуждающих колебаний и параметр затухания возмущений. Определены качественные закономерности роста и указана область устойчивости возмущенного состояния.

Ключевые слова: высокоскоростная кристаллизация, переохлажденные металлы, дендритный рост, вершина дендрита, неустойчивость линии роста.

REGION OF STABILITY OF PERTURBED STATE OF DENDRITE GROWTH LINE IN DEEPLY SUPERCOOLED MELT

O. N. SHABLOVSKY

Educational Institution "Sukhoi State Technical University of Gomel", the Republic of Belarus

The article considers a dendritic growth of crystal from deep (up to 300 K) supercooled melt of pure metal. It was discussed as an example, the properties of nickel and copper melts. The original crystallization phase boundary equation takes into account the local non-equilibrium properties of heat transfer in the solid phase and determines the growth kinetics in the vicinity of the top of the dendrite. It has been shown that the stable mode of vertex evolution largely depends on the nature of the curvature disturbance and the sharpening angle of the growth line. It has been found that wave processes on the crystallization front are determined by two "sound velocities" significantly dependent on the supercooling of the melt. Dynamic properties of stability/instability at different values of speed of traveling perturbation wave are analyzed. Subsonic, sound and supersonic modes of wave propagation are considered. Frequency of excitation oscillations and damping parameter of perturbations are calculated. Author determined qualitative growth patterns and indicated the area of stability of the perturbed state.

Keywords: high-speed crystallization, supercooled metals, dendritic growth, dendrite apex, growth line instability.

Введение

Современные экспериментальные установки позволяют переохлаждать расплавы до 300 К. В этих условиях наблюдаются высокие (20–70 м/с) скорости роста кристалла [1]. Состояние исследований этой фундаментальной задачи представлено в обзорах [2, 3]. В прикладном отношении проблема высокоскоростного затвердевания расплавов важна для разработки новых технологий кристаллизации веществ в неравновесных условиях. В данной статье рассматривается дендритный рост кристалла из глубоко переохлажденного расплава чистого вещества. Цель работы – определить условия, при которых происходит устойчивый рост вершины дендрита.

Возмущенное состояние линии роста

Возьмем за основу уравнение фазовой границы кристаллизации (ФГК), которое получено в [4, 5] для закритической области переохлаждений ΔT. Например, для никеля $\Delta T \geq 166$ К, для меди $\Delta T \geq 180$ К. Это уравнение имеет точное решение $x = F_0(y, t)$, представляющее собой стационарный параболический профиль, перемещающийся с постоянной скоростью:

$$F_0(y,t) = N_0 t + \left(K_0 y^2/2\right), \tag{1}$$

$$\left(K_0 N_0^2 c/\mu\right) - N_0\left[K_0 L_1 + \left(c/\gamma\mu\right)\right] + \left(L_1/\gamma\right) + q_v = 0,$$

$$L_1 = L_* + K_0 U_2; \;\; U_2 = cT_c U_1; \;\; U_1 = U/L; \;\; L_* = L - c_*\Delta T;$$

$$K_0, \, N_0 - \text{const}.$$

Здесь x, y – прямоугольные декартовы координаты; x – ось симметрии дендрита и направлена в сторону твердой фазы; t – время; c – объемная теплоемкость кристалла; c_* – объемная теплоемкость расплава; μ – кинетический коэффициент; γ – время релаксации теплового потока; L – теплота фазового перехода единицы объема вещества; U – поверхностная энергия границы раздела фаз; T_c – равновесная температура кристаллизации; $K_0 > 0$ – кривизна вершины дендрита; $q_v < 0$ – объемный сток энергии, который моделирует теплоотвод от кристалла; ФГК движется справа налево, $N_0 < 0$. Отметим еще, что исходное уравнение ФГК учитывает локально-неравновесные свойства теплопереноса в твердой фазе и определяет кинетику роста вершины дендрита в окрестности оси $y = 0$.

Возмущенное состояние линии роста имеет вид:

$$F(y, t) = F_0(y, t) + f(y, t), \;\; t \geq 0 \tag{2}$$

и после обычной процедуры линеаризации дает уравнение

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\partial^2 f}{\partial t^2} - \alpha_0 \frac{\partial^2 f}{\partial y^2}\right) + \alpha_1 \frac{\partial f}{\partial t} + \alpha_2 \frac{\partial^2 f}{\partial t^2} - \alpha_3 \frac{\partial^2 f}{\partial y^2} = 0, \tag{3}$$

$$\alpha_i = s_i/(L\gamma), \;\; i = 0, 1, 2, 3;$$

$$s_0 = -2N_0 U_2, \;\; s_1 = \left(2K_0 N_0^2 c/\mu\right) - \left(cN_0/\gamma\mu\right) - K_0 N_0 L_* - K_0^2 N_0 U_2, \tag{4}$$

$$s_2 = L + L_* + K_0 U_2 - \left(3cN_0/\mu\right) - K_0 N_0 L\gamma,$$

$$s_3 = 2K_0 N_0^2 U_2 + N_0^2 L_* - \left(N_0 U_2/\gamma\right) - \left(cN_0^3/\mu\right).$$

Здесь $f(y, t)$ – малое возмущение параболической линии роста (1). Коэффициенты $\alpha_i = \alpha_i(\Delta T)$ зависят от переохлаждения расплава посредством функций $N_0 = N_0(\Delta T)$,

$\mu = \mu(\Delta T)$. Для чистых расплавов никеля и меди полуэмпирические зависимости $N_0(\Delta T)$, $\mu(\Delta T)$ получены в [6]. Кривизна K_0 входит в (3) как свободный параметр, числовое значение которого следует задавать, применяя известные в литературе [2, 3] результаты экспериментальных измерений. Нетрудно видеть, что $(\partial F/\partial y) = \mathrm{tg}\theta$, где θ – угол между нормалью линии роста и осью x, поэтому $\theta_1 = (\pi/2) - \theta$ есть угол заострения (см. [5, 6]).

Локальное по координате возмущение вершины

Рассмотрим уравнение (3). Однородное по координате y возмущение $f = f(t)$ определяется уравнением

$$f'' + \alpha_2 f' + \alpha_1 f = 0, \tag{5}$$

которое представляет собой хорошо известное уравнение затухающих колебаний. Здесь $\omega = \alpha_1^{1/2}$ – собственная частота; $r = (\alpha_2/2)$ – параметр затухания; штрих над символом функции означает дифференцирование по времени: $f'(t) = df(t)/dt$. Локальное по координате y точное решение:

$$f(y, t) = f_0(t) + y f_1(t) + y^2 f_2(t) \tag{6}$$

описывает клиновидное возмущение вершины: $y = 0$, $\partial f/\partial y = f_1(t)$. В данном случае имеем:

$$f_2'' + \alpha_2 f_2' + \alpha_1 f_2 = 0, \quad f_1'' + \alpha_2 f_1' + \alpha_1 f_1 = 0,$$

$$f_0'' + \alpha_2 f_0' + \alpha_1 f_0 = 2\alpha_0 f_2 - 2(\alpha_3/\alpha_1)(f_2' + \alpha_2 f_2). \tag{7}$$

Гладкое возмущение вершины: $y = 0$, $\partial f/\partial y = 0$ определяется точным решением:

$$f(y, t) = f_0(t) + y^2 f_2(t) + y^4 f_4(t), \tag{8}$$

$$f_4'' + \alpha_2 f_4' + \alpha_1 f_4 = 0,$$

$$f_2'' + \alpha_2 f_2' + \alpha_1 f_2 = 12 f_4[\alpha_0 - (\alpha_2\alpha_3/\alpha_1)] - 12(\alpha_3/\alpha_1) f_4',$$

$$f_0'' + \alpha_2 f_0' + \alpha_1 f_0 = 2\alpha_0 f_2 -$$

$$-2\frac{\alpha_3}{\alpha_1}\left[f_2' + \alpha_2 f_2 + 12\frac{\alpha_3}{\alpha_1} f_4 + 12\left(\alpha_0 - \frac{\alpha_2\alpha_3}{\alpha_1}\right)\left(\frac{\alpha_2}{\alpha_1} f_4 + \frac{1}{\alpha_1} f_4'\right)\right]. \tag{9}$$

Ясно, что $f_2(t)$ в (8) есть возмущение кривизны: $y = 0$, $(\partial^2 f/\partial y^2) = f_2(t)$. Для всех трех случаев (5), (6) и (8) основным структурным элементом решения является функция

$$f/H = \exp(-rt)\sin\left(t\sqrt{\omega^2 - r^2} + \beta\right);\ \beta,\ H - \mathrm{const},$$

которая при $\omega > r$ характеризует периодический режим затухания, либо функция

$$f = \exp(-rt)\left[H_1 \exp\left(t\sqrt{r^2 - \omega^2}\right) + H_2 \exp\left(-t\sqrt{r^2 - \omega^2}\right)\right];\ H_1,\ H_2 - \mathrm{const},$$

которая при $\omega < r$ дает апериодический режим затухания. Здесь H, H_1, H_2 – малые величины первого порядка малости.

Хорошо видно, что различия в характере пространственной неоднородности возмущения, т. е. различия в поведении заострения и кривизны, приводят к различиям в поведении возмущения $f(y=0,t)=f_0(t)$ на вершине, потому что изменяется вид «возмущающей силы»: см. правые части дифференциальных уравнений (5), (7) и (9). Все три решения (5), (6) и (8) описывают устойчивые процессы возмущения вершины дендрита. В качестве примера отметим, что для никеля и меди в изучаемой области закритических переохлаждений $r^2-\omega^2=\left[\left(\alpha_2^2-4\alpha_1\right)/4\right]>0$, т. е. имеем режим апериодической устойчивости возмущенного состояния (2) вершины.

Бегущая волна возмущения

Рассмотрим решение типа бегущей волны $f=f(y-bt)$, $b\equiv\text{const}>0$. Очевидно, что в этом случае уравнение (3) допускает понижение порядка и принимает вид:

$$b\left(b^2-\alpha_0\right)\dddot{f}+\left(\alpha_3-\alpha_2 b^2\right)\ddot{f}+\alpha_1 b f=C_1\equiv\text{const}. \qquad (10)$$

Здесь точка над символом функции означает дифференцирование $d/d\zeta$ по ее аргументу $\zeta=y-bt$. Коэффициенты перед производными в (10) имеют интересный физический смысл. Дело в том, что уравнение (3) содержит два волновых оператора:

$$\frac{\partial^2 f}{\partial t^2}-\alpha_0\frac{\partial^2 f}{\partial y^2},\ \ \alpha_2\left(\frac{\partial^2 f}{\partial t^2}-\frac{\alpha_3}{\alpha_2}\frac{\partial^2 f}{\partial y^2}\right),$$

поэтому можно формально рассматривать две «скорости звука» w_1 и w_2:

$$w_1^2=\alpha_0,\ \ w_2^2=\alpha_3/\alpha_2.$$

Основной интерес представляют процессы, для которых $\alpha_3>\alpha_0\alpha_2$, т. е. $w_2^2>w_1^2$. Именно это свойство присуще расплавам никеля и меди [4, 5].

Для данного автомодельного решения имеем $\partial f/\partial t=-b\,\partial f/\partial y=-b\dot{f}$. Это значит, что скорость b волны есть взятое со знаком «минус» отношение возмущения скорости $\partial f/\partial t$ к возмущению угла заострения $\partial f/\partial y$.

В тех случаях, когда $b^2\neq w_1^2$, удобно взять $C_1=0$ и записать (10) в виде:

$$\ddot{f}+\frac{\alpha_2\left(w_2^2-b^2\right)}{b\left(b^2-w_1^2\right)}\dot{f}+\frac{\alpha_1}{b^2-w_1^2}f=0. \qquad (11)$$

Обсудим влияние величины b на структуру возмущенного состояния. При описании качественных свойств решений уравнений (10), (11) будет пользоваться терминами, принятыми для особых точек динамических систем второго порядка. В рассматриваемых далее задачах сохраняем обозначения: ω – собственная частота, r – параметр затухания, но в каждом отдельном случае записываем свои формулы для подсчета этих величин.

Режим «дозвуковой-1»: $b^2<w_1^2$. Уравнение (11) имеет решение:

$$f=H_1\exp(z_1\zeta)+H_2\exp(z_2\zeta);\ \ H_1,\ H_2-\text{const}, \qquad (12)$$

$$z_{1,2} = r \pm \sqrt{r^2 + \omega^2}, \ z_1 > 0, \ z_2 < 0,$$

$$2r = \frac{\alpha_2\left(w_2^2 - b^2\right)}{b\left(w_1^2 - b^2\right)} > 0, \ \omega^2 = \frac{\alpha_1}{w_1^2 - b^2} > 0.$$

Проанализируем два варианта возмущения.

Вариант 1. Волна $\zeta = 0$ распространяется по невозмущенному (нулевому) фону: $f(\zeta = 0) = 0.$ В (12) нужно взять $H_1 = -H_2 = H,$ и тогда возмущенное состояние в области $\zeta \le 0$ имеет вид:

$$f/H = \exp(z_1\zeta) - \exp(z_2\zeta), \ z_1\zeta \le 0, \ z_2\zeta \ge 0.$$

Значит, имеем неустойчивость по типу «седло».

Вариант 2. Ситуация меняется, если волна $\zeta = 0$ представляет собой слабый разрыв, разделяющий два устойчивых возмущенных состояния. А именно: перед фронтом

$$f/H_2 = \exp(z_2\zeta), \ z_2 < 0, \ \zeta \ge 0, \ H_1 = 0; \tag{13}$$

за фронтом

$$f/H_1 = \exp(z_1\zeta), \ z_1 > 0, \zeta \le 0, \ H_2 = 0. \tag{14}$$

В этом варианте имеем «устойчивый узел».

Режим «звуковой-1»: $b^2 = w_1^2.$ Уравнение (10) принимает вид:

$$\alpha_2\left(w_2^2 - b^2\right)\dot{f} + \alpha_1 bf = C_1$$

и описывает ситуацию «неустойчивый узел» за фронтом волны $\zeta = 0,$ распространяющейся по нулевому фону:

$$f = \frac{C_1}{\alpha_1 b}\left[1 - \exp\frac{(-\alpha_1 b)\zeta}{\alpha_2\left(w_2^2 - b^2\right)}\right], \ f(\zeta = 0) = 0, \quad \zeta \le 0.$$

Промежуточный интервал скоростей: $0 < w_1^2 < b^2 < w_2^2.$ В этом случае для уравнения (11) имеем:

$$\ddot{f} + 2r\dot{f} + \omega^2 f = 0,$$

$$2r = \frac{\alpha_2\left(w_2^2 - b^2\right)}{b\left(b^2 - w_1^2\right)} > 0, \ \omega^2 = \frac{\alpha_1}{b^2 - w_1^2} > 0. \tag{15}$$

Сначала обсудим апериодическое $\left(r^2 > \omega^2\right)$ решение:

$$f = H_1\exp(z_1\zeta) + H_2\exp(z_2\zeta), \ z_{1,2} = -r \pm \sqrt{r^2 - \omega^2},$$

$$z_1 < 0, \ z_2 < 0, \ H_1, \ H_2 - \text{const}.$$

Волна $\zeta = 0$ распространяется по нулевому фону:

$$f/H = \exp(z_1\zeta) - \exp(z_2\zeta), \ \zeta \le 0; \ H_1 = -H_2 = H.$$

Имеем «неустойчивый узел». Неустойчивость наблюдается и для волны, перед фронтом которой расположен устойчивый фон:

$$f/H_2 = \exp(z_2\zeta), \ z_2 < 0, \ \zeta \ge 0, \ H_1 = 0.$$

За фронтом этой волны по-прежнему получаем «неустойчивый узел»:

$$f/H_1 = \exp(z_1\zeta), \ z_1 < 0, \ \zeta \le 0, \ H_2 = 0.$$

Периодическое $(\omega^2 > r^2)$ решение уравнения (15), описывающее состояние линии роста за волной $\zeta = 0,$ распространяющейся по нулевому фону, определяется формулой

$$f/H = \exp(-r\zeta)\sin\left(\zeta\sqrt{\omega^2 - r^2}\right), \quad r > 0, \quad \zeta \le 0.$$

Это значит, что имеем «неустойчивый фокус». Другой вариант

$$f/H = \exp(-r\zeta)\cos\left(\zeta\sqrt{\omega^2 - r^2}\right),$$

получается при распространении волны $\zeta = 0,$ разделяющей два возмущенных состояния: устойчивое перед фронтом, $\zeta \ge 0,$ $r > 0$ и неустойчивое за фронтом: $\zeta \le 0,$ $r > 0.$

Вывод: в промежуточном интервале скоростей, в отличие от режима «дозвуковой-1», отсутствует апериодическая устойчивость и наблюдается либо «неустойчивый узел», либо «неустойчивый фокус».

Режим «звуковой-2», $b^2 = w_2^2,$ дает устойчивость типа «центр». Уравнение (11) имеет периодическое решение:

$$f/H = \sin\zeta\omega, \ \omega^2 = \alpha_1/\left(w_2^2 - w_1^2\right) > 0,$$

описывающее гармонические колебания возмущенной линии роста.

Режим «сверхзвуковой-2», $0 < w_1^2 < w_2^2 < b^2.$ В этом случае для уравнения (11) имеем:

$$\ddot{f} + 2r\dot{f} + \omega^2 f = 0,$$

$$2r = \frac{\alpha_2\left(b^2 - w_2^2\right)}{b\left(b^2 - w_1^2\right)} > 0, \ \omega^2 = \frac{\alpha_1}{b^2 - w_1^2}. \tag{16}$$

Апериодическое $(r^2 > \omega^2)$ решение задачи о волне, распространяющейся по нулевому фону:

$$f/H = \exp(z_1\zeta) - \exp(z_2\zeta), \ \zeta \le 0; \ f(\zeta = 0) = 0;$$

$$z_{1,2} = r \pm \sqrt{r^2 - \omega^2}, \ z_1 > 0, \ z_2 > 0.$$

Значит, имеем «устойчивый узел». Периодическое $(\omega^2 > r^2)$ решение:

$$f/H = \exp(r\zeta)\sin\left(\zeta\sqrt{\omega^2 - r^2}\right), \ r\zeta \le 0; \ f(\zeta = 0) = 0$$

дает «устойчивый фокус». В классе решений уравнения (16) отсутствуют устойчивые возмущенные состояния перед волной, т. е. при $\zeta \ge 0$.

Вывод: в режимах «звуковой-2», «сверхзвуковой-2» наблюдаются устойчивые режимы возмущения по типу «центр», «устойчивый узел» либо «устойчивый фокус».

Заключение

Локальные по координате y возмущения вида (5), (6), (8) определяют устойчивые во времени процессы роста. Уравнение (3) возмущенного состояния ФГК содержит две скорости звука w_1 и w_2, существенно зависящие от переохлаждения расплава. Выполнен анализ устойчивости/неустойчивости состояния линии роста при различных скоростях b бегущей волны возмущения. Рассмотрены дозвуковые, звуковые и сверхзвуковые режимы распространения волн: $b^2 \le w_1^2 < w_2^2$; $w_1^2 < b^2 \le w_2^2$; $w_1^2 < w_2^2 < b^2$. Указаны качественные закономерности поведения линии роста в этих интервалах скоростей.

Литература

1. Herlach, D. M. Metastable Solids from Undercooled Melts / D. M. Herlach, P. Galenko, D. Holland-Moritz. – Oxford : Pergamon, 2007. – 448 p.
2. Kurz, W. Progress in modelling solidification microstructures in metals and alloys. Part II: dendrites from 2001 to 2018 / W. Kurz, M. Rappaz, R. Trivedi // Int. Mater. Rev., 2020. – P. 1–47. htpps://doi.org/10.1080/09506608.2020.1757894
3. Strickland, J. On Directional Dendritic Growth and Primary Spacing – A Review / J. Strickland, B. Nenchev // Crystals. – 2020. – Vol. 10, iss. 7. – P. 627–657.
4. Шабловский, О. Н. Кинетика роста вершины дендрита в глубоко переохлажденном расплаве. Ч. 1. Уравнение фазовой границы кристаллизации / О. Н. Шабловский // Успехи приклад. физики. – 2013. – Т. 1, № 6. – С. 680–685.
5. Шабловский, О. Н. Кинетика роста вершины дендрита в глубоко переохлажденном расплаве. Ч. II. Аналитическая структура возмущений линии роста / О. Н. Шабловский // Успехи приклад. физики. – 2014. – Т. 2, № 1. – С. 12–17.
6. Шабловский, О. Н. Динамика неустойчивости волновых возмущений и боковое ветвление дендрита в переохлажденном расплаве / О. Н. Шабловский, Д. Г. Кроль // Успехи приклад. физики. – 2022. – Т. 10, № 2. – С. 189–202.

References

1. Herlach D. M., Galenko P., Holland-Moritz D. *Metastable Solids from Undercooled Melts*. Oxford, Pergamon Publ., 2007. 448 p.
2. Kurz W., Rappaz M., Trivedi R. Progress in modelling solidification microstructures in metals and alloys. Part II: dendrites from 2001 to 2018. *International Materials Reviews*, 2020, pp. 1–47. htpps://doi.org/10.1080/09506608.2020.1757894
3. Strickland J., Nenchev B. *On Directional Dendritic Growth and Primary Spacing – A Review*. Crystals, 2020, vol. 10, iss. 7, pp. 627–657.

4. Shablovskiy O. N. Kinetics of dendrite tip growth in the supercooled melt. Part I. The equation of a crystallization phase boundary. *Uspekhi prikladnoy fiziki*, 2013, vol. 1, no. 6, pp. 680–685 (in Russian).
5. Shablovskiy O. N. Kinetics of dendrite tip growth in the supercooled melt. Part II. The analytic structure of perturbations for growth lines. *Uspekhi prikladnoy fiziki*, 2014, vol. 2, no. 1, pp. 12–17 (in Russian).
6. Shablovskiy O. N., Krol D. G. Dynamics of instable wave perturbations and lateral dendrite branching in an undercooled melt. *Uspekhi prikladnoy fiziki*, 2022, vol. 10, no. 2, pp. 189–202 (in Russian).

Поступила 11.01.2023 г.