



## БИФУРКАЦИИ В СТРУКТУРЕ СВОБОДНО РАСТУЩЕГО ДЕНДРИТА ПРИ ЗАТВЕРДЕВАНИИ БИНАРНОЙ СИСТЕМЫ

*П. К. Галенко, М. Д. Кривилев, К. В. Емельянов*

Исследована динамика движения границы раздела жидкой и твердой фаз с дендритной формой с использованием модели локально неравновесного затвердевания переохлажденной бинарной системы. Определен морфологический спектр боковой структуры свободно растущего дендрита. Рассмотрено изменение дендритной структуры в зависимости от значений двух управляющих параметров – начального переохлаждения и расстояния от вершины дендрита, определяющего локальное переохлаждение в каждой точке границы раздела, при этом граница раздела может становиться неустойчивой, периодической и изменять свой период.

### Введение

Большой класс задач математической физики, описываемых дифференциальными уравнениями в частных производных, тесно связан с современной теорией динамического хаоса [1,2]. Приведенные в этих монографиях примеры демонстрируют, насколько важно и полезно при исследовании сложных явлений, описываемых уравнениями в частных производных, искать аналогии с поведением простых и гораздо лучше изученных динамических систем (нелинейных отображений и систем обыкновенных дифференциальных уравнений). Полученные авторами настоящей работы результаты указывают на возможность существования таких аналогий в теории неравновесной кристаллизации.

В статье рассмотрена динамика движения свободной границы раздела фаз в конденсированной среде. Исследуется задача затвердевания переохлажденной бинарной системы с образованием кристаллических структур роста, в особенности дендритных форм роста кристаллов. Дендриты являются хорошо известным примером структурного упорядочения в диссипативных системах, находящихся вдали от термодинамического равновесия и определяемых диффузионным полем массы и кинетикой движения границы раздела [3].

Основной целью работы является изучение развития последовательности ветвления боковой поверхности свободно растущего дендрита. Продолжены исследования [3–6] по изучению поведения дендритного ветвления и его качественной связи с поведением нелинейных динамических систем, проанализирован полученный морфологический спектр боковой поверхности дендрита. Для описания дендритного роста использована модель затвердевания в локально неравновесной бинарной системе [7–10]. Основной особенностью этой модели является включение эффекта локальной неравновесности в диффузионном поле

при высокоскоростном фазовом переходе [7,8]. Эта модель позволяет рассматривать затвердевание как при малых скоростях роста дендритов (малые отклонения от термодинамического равновесия), так и высокоскоростной дендритный рост (большие отклонения от термодинамического равновесия) [11].

## 1. Описание модели

Кратко сформулируем основные допущения используемой модели неравновесного затвердевания бинарной системы:

а) рассматривается изотермическая двухфазная жидко-твердая система при постоянном давлении;

б) система состоит из химически инертного сплава, затвердевающего из переохлажденной жидкости подобно атомному раствору замещения;

в) затвердевание из жидкой фазы может быть настолько быстрым, что скорость  $V$  движения границы раздела фаз сопоставима по величине со скоростью  $V_D$  диффузии;

г) конвекция в жидкости и диффузия в твердой кристаллической фазе являются пренебрежимо малыми.

При этих допущениях процесс управляется массопереносом и кинетикой движения фазовой границы. В частности, из допущения (в) следует, что необходимо принять во внимание конечность скорости диффузионного переноса примеси и отклонение от локального равновесия на фазовой границе [10,11]. Таким образом, модельное описание системы достигается рассмотрением локально неравновесной диффузии примеси и кинетики движения границы раздела фаз.

Опишем основные уравнения модели при предположениях (а-г). Процесс неравновесного затвердевания из переохлажденной бинарной системы может быть описан континуальной моделью [12]

$$\partial/\partial t[(1-G)C_L + kGC_L] + \text{div} \mathbf{J} = 0, \quad (1)$$

$$\tau_D \partial \mathbf{J} / \partial t + \mathbf{J} + D(1-G) \nabla C_L = 0, \quad (2)$$

$$G = 1 - \exp[-(\omega/v)Vdt], \quad (3)$$

$$\partial G / \partial t = (\omega/v)V \text{ при } \int (\omega/v)Vdt \ll 1, \quad (4)$$

$$C_S = k C_L. \quad (5)$$

Здесь  $C_L$  и  $C_S$  являются концентрациями примесного компонента в жидкой и твердой фазах, соответственно;  $\mathbf{J}$  – вектор диффузионного потока растворенного компонента (примеси);  $0 \leq G \leq 1$  является долей твердой фазы в локальном объеме;  $\tau_D = D/V_D^2$  – время диффузионной релаксации локального объема расплава;  $D$  – коэффициент диффузии;  $V$  – скорость движения межфазной границы (границы раздела жидкой и твердой фаз) вдоль вектора нормали, направленного в сторону жидкой фазы;  $t$  – время;  $\omega$  – площадь фазовой границы в затвердевающей системе;  $v$  – объем двухфазной области;  $k$  – коэффициент неравновесного распределения примеси на фазовой границе.

Уравнение (1) учитывает баланс массы и является локальным законом сохранения. Уравнение (2) представляет собой модифицированный закон Фика в линейном приближении, учитывающий релаксацию диффузионного потока [13]. При малых скоростях кристаллизации имеем  $V \ll V_D$ ,  $\tau_D \rightarrow 0$ , и уравнение (2) приводится к закону Фика  $\mathbf{J} = -D(1-G)\nabla C_L$ , справедливому для описания локально равновесного массопереноса при затвердевании. В области высоких скоростей,  $V \sim V_D$ , слагаемое  $\tau_D \partial \mathbf{J} / \partial t$  в уравнении (2) качественно меняет механизм массопереноса при переходе через  $V_D$ . При  $V \geq V_D$  перед фазовым фронтом не успевает сформироваться концентрационный профиль и наступает переход к

бездиффузионному (безотборному по химическому составу) режиму затвердевания [10].

Уравнения (3)–(4) описывают закон прироста твердой фазы  $G$ , которая характеризует степень затвердевания системы в каждой точке и является объемной долей кристаллической фазы в локальном объеме, связанным с этой точкой. Скачок концентрации на фронте затвердевания (5) определяется неравновесным коэффициентом  $k$  распределения примеси, зависящим от скорости  $V$ .

Для расчета неравновесных фазовых превращений выберем связь между температурой, химическим составом и скоростью превращения в виде

$$T_0 = T_A + mC_L + GK - V/\beta, \quad (6)$$

где  $T_0$  – температура в изотермической системе;  $T_A$  – температура затвердевания основного компонента системы;  $m$  – тангенс угла наклона линии кинетического ликвидуса;  $G = \gamma/\Delta S$  – постоянная капиллярности,  $\gamma$  – поверхностное натяжение,  $\Delta S$  – изменение энтропии при затвердевании;  $K$  – кривизна границы раздела фаз ( $K < 0$  для вышуклой в сторону жидкости границы);  $\beta$  – кинетический коэффициент роста кристаллов. Совместно с уравнением (5), выражение (6) определяет связь температуры  $T_0$  в системе и неравновесный состав  $C_L$  при конечной скорости  $V$  фазового превращения. Полагая, что скорость фазового превращения определяется скоростью движения границы раздела фаз, можно определить из (6), что скорость  $V$  описывается уравнениями [11]

$$V = \beta(\Delta T - \Delta T_C - \Delta T_N - \Delta T_T), \quad (7)$$

$$\Delta T = T_A + m_e C_0 - T_0, \quad (8)$$

$$\Delta T_C = m(C_0 - C_L), \quad (9)$$

$$\Delta T_N = (m_e - m)C_0, \quad (10)$$

$$\Delta T_T = -GK, \quad (11)$$

где  $\Delta T$  – полное начальное переохлаждение в системе;  $\Delta T_C$  – концентрационное переохлаждение, обусловленное диффузией примеси;  $\Delta T_N$  – переохлаждение, обусловленное изменением наклона кинетического ликвидуса и определяемое разностью между равновесной линией ликвидуса  $T_A + m_e C_0$  и линией кинетического ликвидуса  $T_A + m C_0$ ;  $\Delta T_T$  – переохлаждение, обусловленное искривлением границы раздела фаз (эффект Гиббса – Томсона).

Существует несколько возможностей для расчета кривизны  $K$  межфазной границы в некоторой точке. Для расчета кривизны в точке границы, где доля  $G$  твердой фазы имеет значение  $0 < G < 1$ , примем выражение [14,15]

$$K = (N_S - N_f) / (2N_0 R). \quad (12)$$

Здесь  $N_S$  является суммой доли твердой фазы  $G$  в точках, принадлежащих кругу диаметра  $2R$  (центр которого совпадает с точкой, в которой вычисляется кривизна);  $N_f$  – сумма доли твердой фазы для случая предполагаемого плоского фронта, проходящего через центр круга;  $N_0$  – количество точек, по которым производится суммирование.

Переохлаждения  $\Delta T_C$  и  $\Delta T_N$ , описываемые уравнениями (9) и (10), включают отклонение линии кинетического ликвидуса от равновесного значения (описываемое функцией  $m(V)$ ), которое в свою очередь зависит от неравновесного распределения примеси (описываемого функцией  $k(V)$ ). Для самосогласованности модели локально неравновесного затвердевания необходимо использовать функции  $k(V)$  и  $m(V)$ , которые учитывают отклонение от локального равновесия как на поверхности раздела фаз, так и в диффузионном поле переноса массы [11].

Неравновесное распределение примеси (или, другими словами, неравновесный захват примеси) описывается коэффициентом  $k(V)$  в виде [16]

$$k = \begin{cases} \{[1 - (V/V_D)^2]k_e + V/V_{DI}\}/[1 - (V/V_D)^2 + V/V_{DI}], & V/V_D < 1, \\ 1, & V/V_D \geq 1, \end{cases} \quad (13)$$

где  $k_e$  – коэффициент равновесного распределения примеси при  $V \rightarrow 0$ ;  $V_{DI}$  – скорость диффузии на границе раздела фаз, причем  $V_{DI} \leq V_D$  [16]. При  $V_D \rightarrow \infty$  выражение (13) дает функцию  $k(V)$  [17], используемую в модели кристаллического роста, которая учитывает только отклонение от локального равновесия на границе раздела фаз. В дополнение к предыдущей модели [17], функция  $k(V)$ , описываемая уравнением (13), включает отклонение от локального равновесия как на границе раздела (введением скорости  $V_{DI}$  поверхностной диффузии), так и в объеме жидкой фазы (введением скорости  $V_D$  диффузии в объеме). Как показывает выражение (13), при  $V=V_D$  происходит полный захват примеси, то есть  $k(V)=1$ . В общем случае, выражение (13) является обобщением модели непрерывного роста [17] на случай локально неравновесной диффузии примеси.

Наклон линии  $m(V)$  кинетического ликвидуса как функция неравновесного распределения примеси и скорости роста кристаллов описывается выражением [18]

$$m = [m_e/(1-k_e)]\{1 - k + \ln(k/k_e) + (1-k)^2V/V_D\}. \quad (14)$$

Выражение (14) в пределе  $V_D \rightarrow \infty$  переходит в выражение для кинетического ликвидуса при локально равновесном массопереносе [17], которое учитывает так называемый эффект примесного сопротивления поверхности раздела фаз (solute-drag effect). Учитывая локально неравновесную диффузию, можно получить выражение (14) при использовании формализма расширенной необратимой термодинамики [16]. В частности, слагаемое  $(1-k)^2(V/V_D)$  в выражении (14) следует из анализа свободной энергии Гиббса для случая высокоскоростного затвердевания и локально неравновесной диффузии примеси [18]. Подстановка функции  $k(V)$  (см. (13)) в выражение (14) дает зависимость наклона  $m(V)$  кинетического ликвидуса от локальной неравновесности на границе раздела фаз и в поле диффузии примеси вблизи границы. Таким образом, используя принятые функции  $k(V)$  и  $m(V)$ , уравнения модели (1)–(14) дают самосогласованный подход к проблеме высокоскоростного затвердевания.

Предложенная система уравнений учитывает локально неравновесный массоперенос, описываемый гиперболической системой уравнений (1) и (2). При рассмотрении таких задач учитывается конечность распространения массы со скоростью  $V_D=(D/\tau_D)^{1/2}$ . В общем случае, на фронте диффузионной волны, то есть на переднем крае диффузионного профиля, движущегося со скоростью  $V_D$ , возникает скачок концентраций, учет которого представляет собой отдельную самостоятельную задачу [19]. В настоящей работе скачок концентрации на движущемся со скоростью  $V_D$  фронте диффузионной волны учитывался рассмотрением потоков  $\mathbf{J}_+$  и  $\mathbf{J}_-$ , а также концентраций  $C_+$  и  $C_-$  «справа» и «слева» от фронта диффузии, соответственно. Это приводит к граничному условию на диффузионном фронте «DF» в виде

$$(\mathbf{J}_+ - \mathbf{J}_-)|_{DF} = V_D(C_+ - C_-)|_{DF}\mathbf{n}, \quad (15)$$

где  $\mathbf{n}$  – вектор нормали диффузионного фронта, направленный в сторону распространения концентрационного возмущения. На границе  $\sigma$  расчетной области принимается условие отсутствия массопереноса

$$(\mathbf{n} \cdot \mathbf{J})|_{\sigma} = 0, \quad (16)$$

где  $\mathbf{n}$  – вектор внешней нормали границы  $\sigma$ . В начальный момент времени задаются условия

$$C_L|_{t=0} = C_0 = \text{const}, \quad J|_{t=0} = 0. \quad (17)$$

Таким образом, система дифференциальных уравнений (1)–(14) вместе с граничными и начальными условиями (15)–(17) описывает процесс неравно-весного изотермического затвердевания бинарного сплава с малым содержанием примеси.

## 2. Моделирование

Система уравнений (1)–(14) при граничных и начальных условиях (15)–(17) решалась в двумерной области численно. Для этого уравнения были приведены к безразмерному виду в соответствии с выбранными характерными масштабами диффузионных процессов в объеме жидкой фазы и кинетики на границе раздела фаз. Использовались следующие масштабы диффузионных процессов: по пространству  $h_D = a_0 n_0$  ( $h_D$  – несколько межатомных расстояний  $a_0$ ,  $n_0$  – число межатомных расстояний порядка  $10^1$ ); по времени  $\tau_D = h_D / V_D$ ; по температуре  $T_D = V_D / \beta_0$ . Система уравнений решалась в двумерном пространстве с применением метода конечных разностей и специально разработанного алгоритма, описанных в работе [19].

Решение уравнений (1)–(17) осуществлялось на квадратной решетке, имеющей расстояние  $h$  между узлами. Моделирование производилось на каждом временном шаге  $\tau$ , где  $\tau$  и  $h$  связаны соотношением [19]

$$D\tau/h^2 = 1/\epsilon. \quad (18)$$

Здесь  $\epsilon$  – параметр устойчивости вычислительной схемы (при решении гиперболических уравнений (1) и (2) для двумерной вычислительной схемы необходимое условие устойчивости есть  $\epsilon \leq 8$  [19]).

В начальный момент времени моделирования в расчетной области задавался ряд твердых ячеек в виде плоского фронта с возмущением в центре фронта. Выступая в переохлажденный расплав, это возмущение имеет более выгодное положение для роста по сравнению с остальным плоским фронтом благодаря ускоренному отводу примеси [3]. Поэтому возмущение прорастало вглубь жидкости быстрее остальной поверхности, которая в дальнейшем приостанавливалась в своем развитии благодаря постепенному накоплению примеси и снятию переохлаждения перед ним. При моделировании дендритного роста соблюдалось следующее правило: твердая фаза может расти только на ранее сформированной твердой фазе, и зарождение твердофазных центров кристаллизации перед фронтом затвердевания в объеме жидкой фазы принимается маловероятным. Были выбраны следующие константы расчета, приемлемые для сплава Fe–C:  $T_A = 1809$  К,  $C_0 = 0.1$  вес.%,  $\beta_0 = 0.4$  м/(с·К),  $\gamma = 0.0$  Дж/м<sup>2</sup>,  $m_e = 0.1$  К/вес.%,  $k_e = 0.1$ ,  $D = 6 \cdot 10^{-8}$  м<sup>2</sup>/с,  $V_D = V_{Df} = 17$  м/с,  $Q = 10^9$  Дж/м<sup>3</sup>,  $c_p = 5 \cdot 10^6$  Дж/(К·м<sup>3</sup>),  $a_0 = 3 \cdot 10^{-10}$  м,  $T_Q = Q/c_p$  ( $Q$  – скрытая теплота затвердевания,  $c_p$  – удельная теплоемкость при постоянном давлении). Расчеты производились в области  $447 \times 447 h^2$ .

## 3. Результаты моделирования и дискуссия

В результате численного решения уравнений модели (1)–(14) была изучена динамика движения границы раздела фаз и найден морфологический спектр боковой ветвящейся структуры свободно растущего дендрита. Все результаты моделирования оценивались относительно параметра  $V_0/V_D$ , где  $V_0$  – начальная скорость движения фазовой границы, определяемая исходным переохлаждением  $\Delta T$  согласно уравнениям (7)–(11).

Прежде всего отметим, что в поведении растущих кристаллов можно выделить характерные качественные особенности, наблюдаемые в поведении

нелинейных динамических систем. В частности, в процессе формирования структуры растущих кристаллов имеют место следующие три динамических режима, характерные также для конвекции Рэлея – Бенара при переходе от конвективных валов к турбулентному движению жидкости или в процессе диффузионно лимитируемого роста агрегатов [20]:

1) почти равновесный рост макроскопически округлого кристалла, при котором его форма определяется по правилу Кюри – Вульфа (малые отклонения от равновесия);

2) возникновение упорядоченных форм роста (неравновесность полностью управляет структурообразованием);

3) образование разупорядоченных кристаллов со случайным периодом ветвления (хаос).

Все три режима обусловлены переходом из равновесного или почти равновесного состояния к неравновесному, а затем и сильно неравновесному состоянию. На рис. 1 эти режимы показаны в виде некоторых конечных состояний

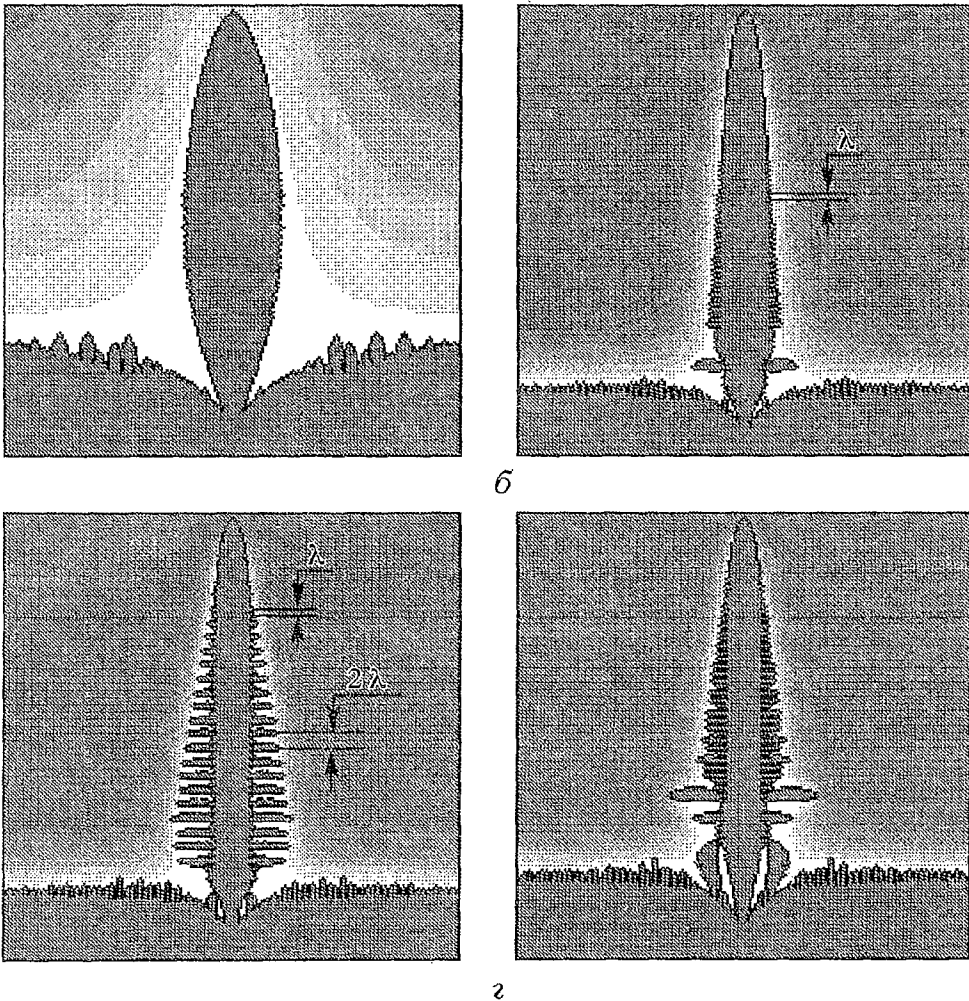


Рис. 1. Квазистационарные формы роста кристаллов в двумерной модели локально равновесного затвердевания бинарной системы [9]: а – иглообразный дендрит,  $\Delta T=1.08T_Q$ ; б – дендритная структура после развития неустойчивости боковой поверхности и бифуркации с образованием ветвей, имеющих постоянный период ветвления  $\lambda$ ,  $\Delta T=1.09T_Q$ ; в – дендритная структура после развития неустойчивости боковой поверхности и структурной бифуркации удвоения периода ветвления  $\lambda \rightarrow 2\lambda$ ,  $\Delta T=1.12T_Q$ ; г – хаос в ветвлении боковой поверхности дендрита,  $\Delta T=1.165T_Q$ . Вблизи дендритных поверхностей показано диффузионное поле, значения концентраций в котором убывают по направлению от светлого цвета к темному

после эволюции границы раздела фаз в модели дендритного роста [6]. Далее рассмотрим подробнее динамику границ раздела, приводящую к развитию структуры кристалла в неравновесных условиях.

На рис. 2 показана динамика границы раздела фаз в некоторые фикс-

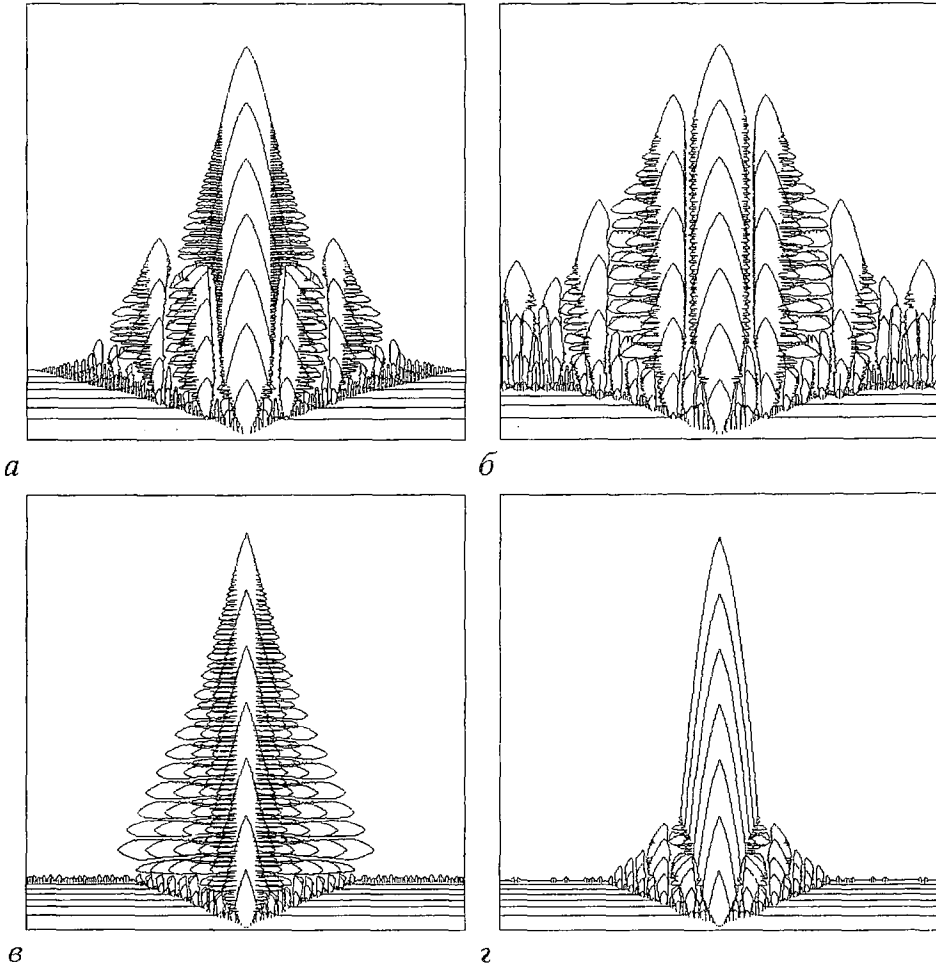


Рис. 2. Динамика границы раздела фаз в различные моменты времени для значений  $V_0/V_D$ :  $a - 0.473$ ,  $б - 0.638$ ,  $в - 0.691$ ,  $г - 0.698$

рованные моменты времени. Из исходного структурного возмущения в центре фронта со временем формируется иглообразный кристалл около-параболической формы вблизи его вершины (рис. 2, *a*). При дальнейшем прорастании кристалла вглубь переохлажденной жидкости его боковая поверхность становится морфологически неустойчивой, и возникают возмущения на поверхности кристаллической иглы. Природа этой неустойчивости связана с конкуренцией стабилизирующих и дестабилизирующих сил на боковой поверхности иглообразного кристалла, имеющей вдали от его вершины слабо выпуклую форму, близкую к плоскости<sup>1</sup>. В общем случае такими конкурирующими силами

<sup>1</sup> Строго говоря, природа неустойчивости боковой поверхности дендрита может быть обусловлена не только линейной морфологической неустойчивостью по сценарию Маллинза – Секерки [21]. Неустойчивость поверхности раздела может также быть обусловлена: во-первых, эволюцией структурной волны, бегущей с вершины кристалла вдоль его боковой поверхности [22]; во-вторых, наличием стохастического шума, ведущего к флуктуациям на боковой поверхности иглообразного кристалла [23]; в-третьих, высокочастотными возмущениями при изотропном росте и возмущениями с нулевой частотой при анизотропном росте [24]. Поэтому для однозначного определения конкретного сценария неустойчивого развития фазовой границы требуется сопоставление выводов аналитических теорий и результатов численного моделирования.

являются силы поверхностной энергии и концентрационный градиент в каждой точке границы. В настоящей работе принята нулевая поверхностная энергия (см. константы моделирования в разделе 2). Поэтому нарастание возмущений обусловлено преобладанием концентрационных градиентов над стабилизирующим влиянием вычислительной решетки (см. дискуссию в работах [3,6]). Появившиеся возмущения растут во времени и превращаются в боковые ветви кристалла на основном стволе. Происходит переход от иглообразной к дендритной форме роста кристалла (см. рис. 2, а).

При некоторых переохлаждениях может преобладать возмущение основного фронта по сравнению с возмущениями боковой поверхности иглообразного кристалла. На рис. 2, б показана динамика фронта, когда развитие возмущения в центре фронта ведет к развитию как иглообразного кристалла, так и самого фронта. При этом развитие неустойчивости фронта ведет к образованию дендритных кристаллов, гасящих боковое ветвление основного иглообразного кристалла в центре области. Таким образом, эволюция свободно растущего кристалла может быть прекращена, если неустойчивость общего фронта затвердевания при данном исходном переохлаждении ведет к значительному развитию кристаллов на фронте. В этом случае свободный рост дендрита невозможен, поскольку затвердевание происходит в виде кристаллического ансамбля, внутри которого отдельные кристаллы взаимодействуют друг с другом через перекрывающиеся концентрационные поля или чисто механическим сопряжением боковых ветвей.

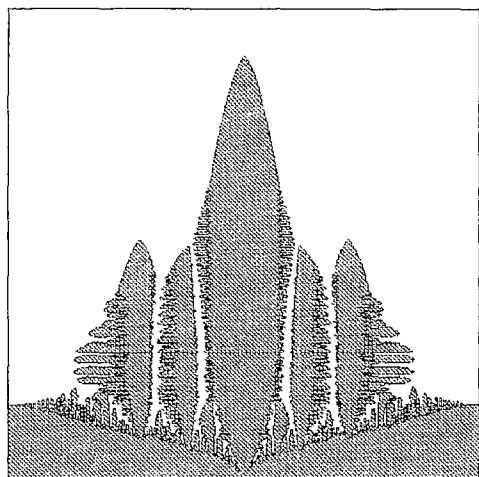
Возможны также сценарии, когда развитие свободно растущего кристалла происходит наиболее полно. На рис. 2, в показана динамика фронта, приводящая к практически полному развитию свободного роста дендрита, в боковой структуре которого отчетливо наблюдается конкуренция между ветвями. Эта конкуренция приводит к так называемому неравновесному укрупнению боковых ветвей, когда формируются быстрорастущие вторичные ветви, между которыми остаются неразвитыми медленнорастущие ветви. При дальнейшем увеличении переохлаждения, то есть увеличении начальной стартовой скорости затвердевания, может происходить переход к гладким формам роста, как это представлено на рис. 2, г. Скорость движения кристаллической иглы настолько высока, что боковая поверхность остается морфологически устойчивой в течение всего времени затвердевания системы<sup>2</sup>.

Таким образом, на примере образования некоторых неравновесных форм роста (см. рис. 2) показано, что динамика фазовой границы может иметь различные сценарии. Последовательность таких сценариев, ведущих к различным типам структур, назовем морфологическим спектром и далее покажем, какие основные структуры свободно растущего дендрита могут появляться в зависимости от начального отклонения от равновесия, то есть от исходной скорости  $V_0/V_D$  (исходного переохлаждения  $\Delta T$ ) в этом спектре.

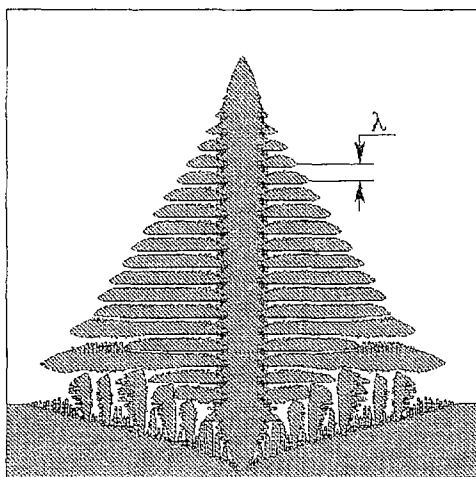
На рис. 3, а показано развитие кристаллической иглы, представляющей собой гладкую протяженную область позади вершины. Возмущение поверхности иглы происходит лишь вблизи соседних кристаллов благодаря накоплению примеси у фазовой границы из-за перекрывания соседних концентрационных полей. Когда нарушается морфологическая устойчивость боковой поверхности иглообразного кристалла, происходит возникновение и развитие вторичных ветвей (рис. 3, б). Расстояние между ними имеет постоянное значение равное  $\lambda$ . В этом случае можно предположить, что с увеличением отклонения от равновесия в системе произошел переход от гладкой иглообразной формы роста к разветвленному дендриту вследствие структурной бифуркации [6].

<sup>2</sup> Отметим, что, согласно теории высокоскоростного затвердевания, с увеличением скорости  $V$  роста градиенты концентрации в каждой точке фронта уменьшаются вплоть до нуля при  $V \geq V_D$  [7–12]. Как следует из результатов работы [6], существует критическое значение скорости  $V_C < V_D$ , выше которого стабилизирующее действие вычислительной решетки будет превалировать над дестабилизирующим действием концентрационных градиентов на фронте. Поэтому при  $V_C \leq V < V_D$  следует ожидать развития морфологически гладких форм роста, что и показано на рис. 2, г.

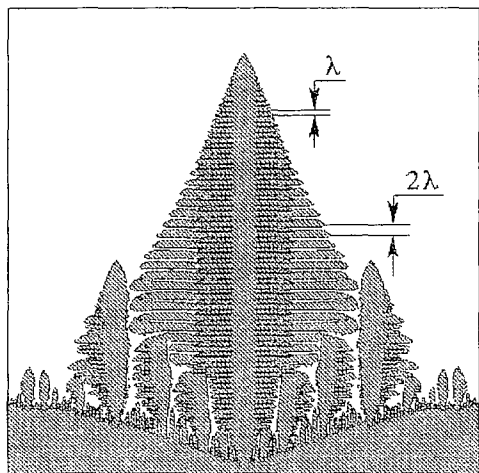




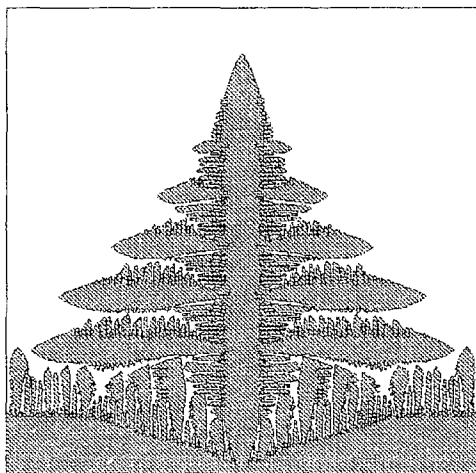
а



б



в



г

Рис. 3. Иллюстрация различных типов структур свободно растущего дендрита в морфологическом спектре: а – иглообразный дендрит,  $V_0/V_D=0.456$ ; б – дендритная структура после развития неустойчивости боковой поверхности и бифуркации с образованием ветвей, имеющих постоянный период ветвления  $\lambda$ ,  $V_0/V_D=0.458$ ; в – дендритная структура после структурной бифуркации удвоения периода ветвления  $\lambda \rightarrow 2\lambda$ ,  $V_0/V_D=0.536$ ; г – пакетная структура ветвей дендрита,  $V_0/V_D=0.566$

Взаимодействие диффузионных полей соседних ветвей ведет к неравновесному укрупнению в структуре боковой поверхности свободно растущего дендрита. Это явление заключается в том, что каждая вторая ветвь замедляется в своем развитии и по прошествии некоторого времени может быть приостановлена соседними быстро растущими ветвями [5]. В результате расстояние между быстро растущими ветвями увеличивается и становится равным  $2\lambda$ . Как показано на рис. 3, в, благодаря структурной бифуркации происходит удвоение периода ветвления ( $\lambda \rightarrow 2\lambda$ ) вдоль основного ствола дендрита. Отметим, что ветвление боковой поверхности дендрита и выделение характерного расстояния во вторичном ветвлении зависит от  $\Delta T$  и связано с отбором длины волны структурного возмущения [3–6]. Эволюция структуры боковой поверхности дендрита может иметь регулярное удвоение периода  $\lambda$  структурной волны в виде двойного увеличения ( $\lambda \rightarrow 2\lambda \rightarrow 4\lambda$ ) вдоль основного ствола дендрита (см. рис. 3, в и работы

[3–6]). Как следует из термодинамического анализа Уманцева и Ольсона [25], увеличение периода ветвления растущей структуры путем удвоения расстояния между структурными элементами является признаком неравновесного укрупнения структуры в консервативной системе с внутренней диссипацией.

Дальнейшее увеличение неравновесности в системе приводит к хаосу в ветвлении боковой поверхности дендрита. Среди развивающихся вторичных ветвей уже не будет существовать постоянного периода ветвления. В этом случае происходит подбор длины волны структурного возмущения, которая имеет непостоянное значение вдоль основного ствола дендрита. При еще большем увеличении неравновесности имеет место переход к так называемой пакетной структуре боковой поверхности дендрита (рис. 3, 2). Расстояние между быстрорастущими ветвями в пакетной структуре может быть различным [9] и, обычно, не кратно увеличению периода с удвоением по сценарию  $\lambda \rightarrow 2\lambda \rightarrow 4\lambda \rightarrow 8\lambda$ .

Таким образом, морфологический спектр структуры боковой поверхности дендрита обусловлен конкурентным отбором между вторичными ветвями. Это наглядно может быть показано на рис. 4, а, где в результате конкуренции вначале

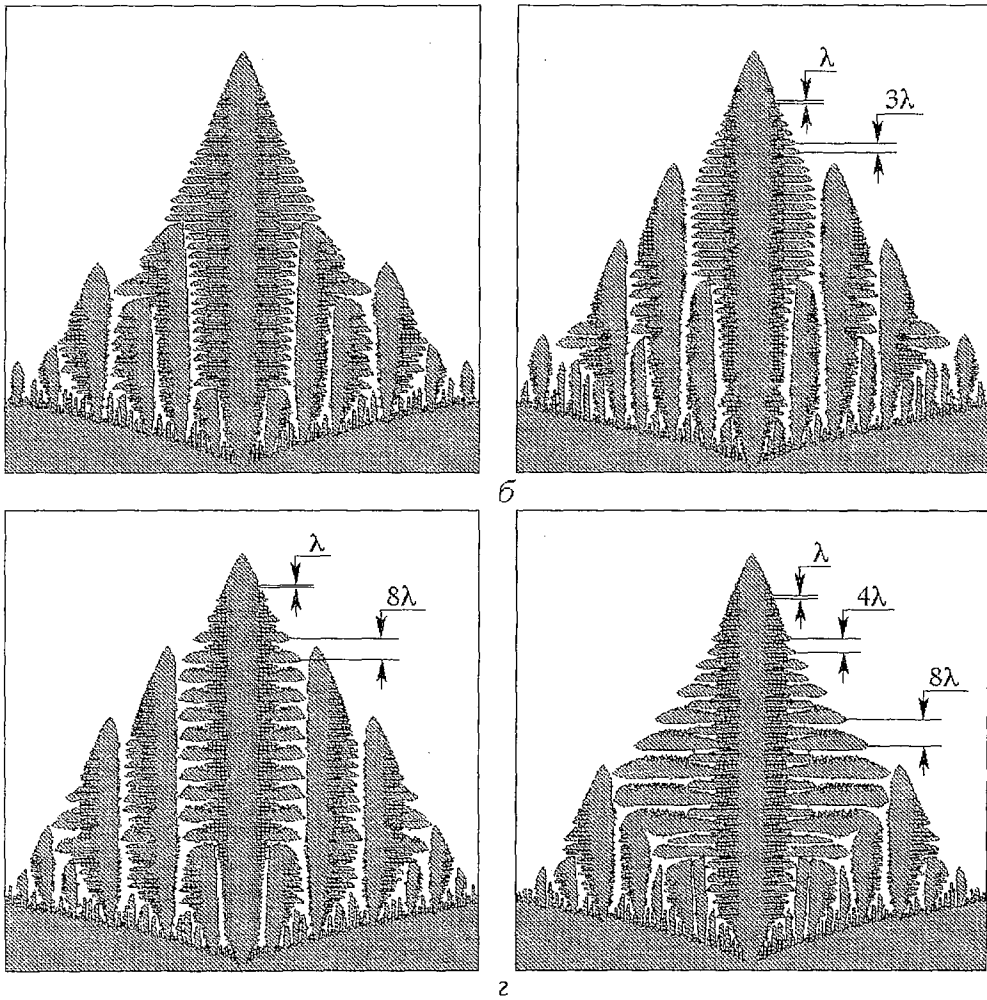


Рис. 4. Нетривиальное ветвление дендритов: а – образование дуплекс-структур (дублонов) в боковом ветвлении дендрита,  $V_0/V_D=0.406$ ; б – дендритная структура после структурной бифуркации трехкратного увеличения периода ветвления  $\lambda \rightarrow 3\lambda$ ,  $V_0/V_D=0.348$ ; в – дендритная структура после структурной бифуркации восьмикратного увеличения периода ветвления  $\lambda \rightarrow 8\lambda$ ,  $V_0/V_D=0.353$ ; г – дендритная структура после структурной бифуркации четырехкратного увеличения периода ветвления  $\lambda \rightarrow 4\lambda \rightarrow 8\lambda$ ,  $V_0/V_D=0.419$

образуются так называемые дуплекс-структуры вторичных ветвей (или, так называемые дублоны), внутри которых «выживают» лишь отобранные быстрорастущие вторичные ветви. Подобные дуплекс-структуры наблюдаются также после развития морфологической неустойчивости плоских фронтов в натуральных экспериментах при направленном затвердевании бинарных систем [26] и являются промежуточным типом структур между ячеисто-дендритной или дендритно-ячеистой структурами роста [26,27]. Такое поведение можно качественно сопоставить с поведением динамических систем, претерпевающих бифуркации изменения периода.

В последнее время имеется ряд работ по изучению динамических систем с диссипацией, где наряду с бифуркациями удвоения обнаружены каскады бифуркаций трех-, четырехкратного и т.д. увеличения периода [28–31]. Интересно отметить, что помимо дендритов с ветвями, находящимися на одинаковом расстоянии  $\lambda$  (рис. 3, б), имеющих период удвоения  $\lambda \rightarrow 2\lambda \rightarrow 4\lambda$  (рис. 3, в) или структуру пакетов (рис. 3, г), существуют также другие типы регулярных боковых структур. Например, на рис. 4, б–г показаны структуры после трехкратного увеличения периода ветвления,  $\lambda \rightarrow 3\lambda$ , изменения периода  $\lambda \rightarrow 8\lambda$ , а также после четырехкратного увеличения периода,  $\lambda \rightarrow 4\lambda \rightarrow 8\lambda$ . Приведенные выше результаты позволяют предположить, что динамика фронта затвердевания может быть качественно описана некоторой простой динамической системой (к таковым мы относим обыкновенные дифференциальные уравнения и нелинейные отображения), по крайней мере, в ограниченном интервале значимых параметров модели. К настоящему времени известны работы, где модель дендритного роста сводится к одному интегро-дифференциальному уравнению, анализ которого в линейном приближении позволил установить условие устойчивости вершины и период бокового ветвления кристалла при малых переохлаждениях [32,33]. Поиск аналогичной динамической системы, дающей объяснение наблюдаемым нами структурным бифуркациям, может явиться предметом дальнейшего исследования.

В заключение опишем укрупнение боковой структуры для случая регулярного удвоения периода ветвления вдоль основного ствола дендрита. Аналогичное описание было дано впервые для роста дендритов чистого вещества в работе [5]. Пусть  $X(z)$  – координата границы раздела фаз на расстоянии  $z$  от вершины дендрита. На стационарной стадии движения вершины со скоростью  $V_s$  боковая поверхность дендрита разбивается на ряд характерных областей (рис. 5):

- функция  $X(z)$  монотонно возрастает от нуля при  $x=0$  (вершина дендрита) до значения  $\delta_s$  при  $z=z_s$  (граница стационарной невозмущенной области за вершиной дендрита);

- функция  $X(z)$  становится периодической благодаря неустойчивости в точке  $z=z_s$ ; происходит бифуркация в периодическое решение с периодом  $\lambda=t_s V_s$  ( $t_s$  – характерное время образования структуры); появляются две огибающие функции  $X(z)$ :  $x_s$  проходит по максимальным значениям, а  $x_{m1}$  проходит по минимальным значениям функции;

- неустойчивость функции  $X(z)$  в точке  $z=z_1$  приводит к раздвоению функции  $X(z)$ ; происходит бифуркация с изменением периода ветвления, что ведет к укрупнению структуры боковых ветвей; увеличение функции  $X(z)$  происходит за счет появления быстрорастущих ветвей, имеющих огибающую  $x_s$ ; пространственный период, необходимый для развития быстро растущих ветвей, удваивается и становится равным  $2\lambda$ ; длина медленно растущих ветвей с огибающей  $x_{m2}$  остается неизменной;

- неустойчивость функции  $X(z)$  в точке  $z=z_2$  и следующая бифуркация приводят к дальнейшему удвоению периода ветвления ( $2\lambda \rightarrow 4\lambda$ ); функция  $X(z)$  раздваивается на возрастающую ветвь  $x_s$  и невозрастающую ветвь  $x_{m4}$ .

Таким образом, можно заключить, что изменение дендритной структуры может быть рассмотрено в зависимости от двух управляющих параметров:

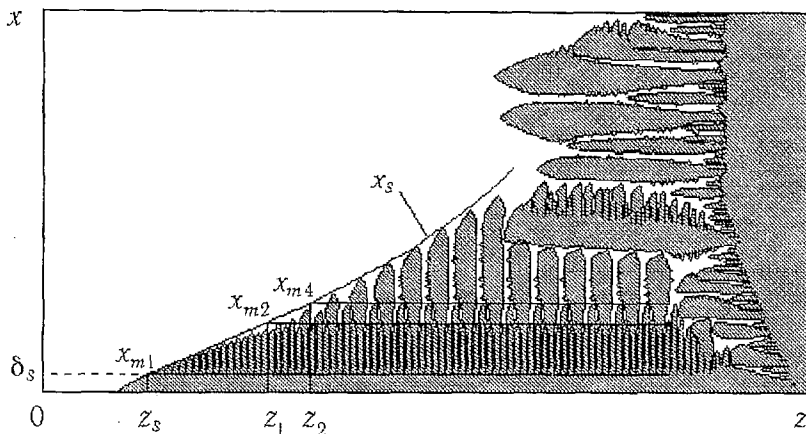


Рис. 5. Боковая структура после регулярного удвоения периода ветвления,  $\lambda \rightarrow 2\lambda \rightarrow 4\lambda$ , вдоль основного ствола дендрита,  $V_0/V_D=0.564$

1) начального отклонения от равновесия, то есть начальной скорости или начального переохлаждения (см. морфологический спектр на рис. 3 и нетривиальное укрупнение структуры на рис. 4);

2) расстояния от вершины дендрита, в зависимости от которого функция  $X(z)$  может становится неустойчивой, периодической и изменять свой период (см. рис. 5). Это расстояние будет определять локальное переохлаждение, которое также можно принять за параметр, при изменении которого наблюдаются структурные бифуркации. На рис. 5 это выглядит как изменение периода ветвления при увеличении расстояния от вершины дендрита вдоль оси  $z$ .

Дальнейшее изучение структуры дендрита благодаря структурным бифуркациям авторы видят в описании динамики фазовой границы именно в зависимости от этих двух управляющих параметров.

## Выводы

Для описания роста кристаллов дендритного строения в переохлажденной бинарной системе использована модель локально неравновесного затвердевания (см. раздел 1). Численное решение уравнений модели позволило установить динамику дендритной твердо-жидкой границы в переохлажденной бинарной системе (см. раздел 2 и рис. 2) и режимы роста кристаллов при отклонении от равновесия как на поверхности раздела фаз, так и в объеме жидкой фазы.

При увеличении исходного отклонения от равновесия ветвление дендритной боковой поверхности дает следующий морфологический спектр: иглообразный дендрит; плотная структура вторичных ветвей с одинаковым периодом ветвления между ними; хаотическая структура, имеющая непостоянный период ветвления боковой поверхности дендрита; удвоенный период между вторичными ветвями боковой поверхности дендрита; пакетная структура, представляющая собой быстро растущие вторичные ветви с плотно упакованной структурой медленно растущих между ними вторичных ветвей. Аналогичное поведение в структуре бокового ветвления благодаря развитию структурных бифуркаций было зафиксировано ранее при исследовании дендритной структуры в локально равновесных условиях затвердевания бинарной системы [6]. Обнаруженный морфологический спектр в структуре бокового ветвления (рис. 3), обусловлен конкурентным отбором между вторичными ветвями. Это наглядно может быть показано на рис. 4, а, где в результате конкуренции образуются так называемые дуплекс-структуры (дублоны), внутри которых «выживают» лишь отобранные быстрорастущие вторичные ветви.

В зависимости от исходного отклонения от равновесия могут развиваться дендриты с боковой структурой после нетривиального изменения периода ветвления. На рис. 4, б–г показаны дендриты с боковой структурой после трех-, восьми- и четырехкратного увеличения периода ветвления соответственно. Если рассматривать изменение границы раздела фаз в зависимости от ее неустойчивости и последовательности бифуркаций в некоторых критических точках (см. рис. 5), то нетривиальное укрупнение (см. рис. 4) имеет более сложный сценарий, чем только удвоение периода между вторичными ветвями.

*Настоящая работа частично выполнена при финансовой поддержке гранта Министерства общего и профессионального образования Российской Федерации по разделу «Естественное знание. Теоретическая и математическая физика» (грант № 97–0–14.3–13).*

### Библиографический список

1. Schuster H.G. Deterministic Chaos. Weinheim: Physik-Verlag, 1984.
2. Берже П., Помао И., Видаль К. Порядок в хаосе. М.: Мир, 1991.
3. Galenko P.K., Zhuravlev V.A. Physics of Dendrites. Singapore: World Scientific, 1994.
4. Уманцев А.Р., Виноградов В.В., Борисов В.Т. Математическое моделирование роста дендритов в переохлажденном расплаве // Кристаллография. 1985. Т. 30, № 3. С. 455.
5. Уманцев А.Р., Виноградов В.В., Борисов В.Т. Моделирование эволюции дендритной структуры // Кристаллография. 1986. Т. 31, № 5. С. 1002.
6. Galenko P.K., Krivilyov M.D., Buzilov S.V. Bifurcations in a sidebranch surface of a free-growing dendrite // Phys. Rev. E. 1997. Vol. 55, № 1. P. 611.
7. Галенко П.К. Эффект диффузионной релаксации при высокоскоростной кристаллизации бинарного сплава // Кристаллография. 1993. Т. 38, № 6. С. 238.
8. Galenko P. Local nonequilibrium phase transition model with relaxation of the diffusion flux // Phys. Lett. A. 1994. Vol. 190, № 3/4. P. 292.
9. Галенко П.К. К феноменологической теории локально неравновесной кристаллизации // Докл. РАН. 1994. Т. 334. С. 707.
10. Galenko P., Sobolev S. Local nonequilibrium effect on undercooling in rapid solidification of alloys // Phys. Rev. E. 1997. Vol. 55, № 1. P. 343.
11. Galenko P.K., Danilov D.A. Local nonequilibrium effect on rapid dendritic growth in a binary alloy melt // Phys. Lett. A. 1997. Vol. 235, № 3. P. 271.
12. Galenko P.K., Krivilyov M.D. Crystal pattern formation under local non-equilibrium solidification // Fractal Frontiers. Eds M.M. Novak and T.G. Dewey. Singapore: World Scientific, 1997. P. 411.
13. Jou D., Casas-Vazquez J., Lebon G. Extended Irreversible Thermodynamics. 2nd ed. Berlin: Springer, 1996.
14. Family F., Platt D.E., Vicsek T. Deterministic growth model of pattern formation in dendritic solidification // J. Phys. A: Math. Gen. 1987. Vol. 20. P. L1177.
15. Meakin P., Family F., Vicsek T. Viscous fingering simulated by off-lattice aggregation // J. Colloid Interface Sci. 1987. Vol. 117. P. 394.
16. Sobolev S.L. Effects of local nonequilibrium solute diffusion on rapid solidification of alloys // Phys. Stat. Sol. A. 1996. Vol. 156. P. 293.
17. Aziz M.J., Kaplan T. Continuous growth model for interface motion during alloy solidification // Acta Metall. 1988. Vol. 36. P. 2335.
18. Галенко П.К. Анализ движения границы раздела фаз с позиций расширенной необратимой термодинамики: Препринт. Ижевск: УдГУ, 1998.
19. Кривилев М.Д., Галенко П.К. Программный комплекс для моделирования кристаллического структурообразования в переохлажденных бинарных сплавах. Ижевск: Издательский Дом «Удмуртский университет», 1999.
20. Сандер Л.М. Континуальная диффузионно-лимитируемая агрегация:

случайный фрактальный рост, порождаемый детерминистической моделью // Фракталы в физике / Под. ред. Л. Пьетронеро и Э. Тозатти. М.: Мир, 1988. С. 336.

21. *Mullins W.W., Sekerka R.F.* // *J. Appl. Phys.* 1963. Vol. 34. P. 323; *ibid.* 1964. Vol. 36. P.444.

22. *Pelce P.* Dynamics of curved fronts. N.-Y.: Academic Press, 1988.

23. *Langer J.S.* // *Phys. Rev. A.* 1987. Vol. 36. P. 3350.

24. *Xu J.J.* // *Phys. Rev. E.* 1996. Vol. 53. P. 5051.

25. *Umantsev A., Olson G.B.* Phase equilibria and transformations in adiabatic systems // *Phys. Rev. E.* 1993. 48. P. 4229.

26. *Jamgotchian H., Trivedi R., Billia B.* Array of doublets: A branch of cellular solutions in directional solidification // *Phys. Rev. E.* 1993. Vol. 47. P. 4313.

27. *Бренер Е.А., Темкин Д.Е.* Ячейстая, дендритная и дублонная структуры при направленной кристаллизации // ЖЭТФ. 1996. Т.109, № 3. С. 1038.

28. *Гольберг А.И., Синай Я.Г., Ханин К.М.* Универсальные свойства последовательности утроения периода // УМН. 1983. Т.38, № 1. С. 159.

29. *Синай Я.Г., Халатников И.М.* Предисловие // Фракталы в физике / Под. ред. Л. Пьетронеро и Э. Тозатти. М.: Мир, 1988. С. 7.

30. *Кузнецов А.П., Кузнецов С.П., Сатаев И.Р.* Коразмерность и типичность в контексте проблемы описания перехода к хаосу через удвоения периода в диссипативных динамических системах // Регулярная и хаотическая динамика. 1997. Т.2, № 3/4. С. 90.

31. *Kuznetsov A.P., Kuznetsov S.P., Sataev I.R.* A variety of period-doubling universality classes in multy-parameter analysis of transition to chaos // *Physica D.* 1997. Vol. 109. P. 91.

32. *Langer J.S., Mueller-Krumbhaar H.* Theory of dendritic growth. Elements of stability analysis // *Acta Metall.* 1978. Vol. 26. P. 1681.

33. *Langer J.S., Mueller-Krumbhaar H.* Theory of dendritic growth. Instabilities in the limit of vanishing surface tension // *Acta Metall.* 1978. Vol. 26. P. 1689.

Удмуртский государственный  
университет

Поступила в редакцию 15.01.99  
после переработки 26.02.99

## BIFURCATIONS IN A STRUCTURE OF A FREE-GROWING DENDRITE DURING SOLIDIFICATION OF A BINARY SYSTEM

*P.K. Galenko, M.D. Krivilyov, K.V. Emelyanov*

Using a model of local nonequilibrium solidification of supercooled binary system the dynamics of a motion of the liquid–solid interface having dendritic structure is investigated. The morphological spectrum of side-branch surface of a free-growing dendrite is defined. The modification of dendritic structure is considered in an association with two controlling parameters: an initial undercooling and position from the tip of dendrite which is define local undercooling at the phase interface. Due to the values of these parameters the interface can become unstable, periodic, and bifurcate with doubling, trebling of the period and so on.



*Галенко Петр Константинович*, 1961 года рождения, окончил Ленинградский политехнический институт (1985). Защитил кандидатскую диссертацию по теории и моделированию ростовых структур в металлических системах (1991). Доцент Удмуртского государственного университета, руководитель лаборатории физики конденсированных сред и лаборатории самоорганизующихся систем. Автор более 40 научных статей, монографии «Physics of Dendrites» (World Scientific, Singapore, 1994) в соавторстве с В.А.Журавлевым. С 1995 года – член Нью-Йоркской Академии Наук. Области научных интересов – теория фазовых и структурных переходов в конденсированных средах, математическая физика, теория затвердевания, фрактальный анализ, вычислительная физика, термодинамика необратимых процессов, материаловедение. E-mail: pkg@uni.udm.ru



*Кривилёв Михаил Дмитриевич*, 1974 года рождения, окончил физический факультет Удмуртского государственного университета (1996). Аспирант, сотрудник лаборатории физики конденсированных сред физического факультета Удмуртского государственного университета. Автор 3 научных публикаций. В соавторстве с П.К. Галенко опубликовал учебное пособие «Программный комплекс для моделирования кристаллического структурообразования в переохлажденных бинарных сплавах» (Ижевск: УдГУ, 1998). Области научных интересов – теория затвердевания и ростовые структуры, математическое моделирование и программные комплексы.



*Емельянов Константин Владимирович*, 1975 года рождения, окончил физический факультет Удмуртского государственного университета (1996). Аспирант и сотрудник лаборатории физики конденсированных сред физического факультета Удмуртского государственного университета. Области научных интересов – теория затвердевания и ростовые структуры, математическая физика, интегрируемые и неинтегрируемые динамические системы.