РАСПЛАВЫ **2024, № 2, с. 189–210**

УДК: 536.421.4

ЛИНЕЙНЫЙ АНАЛИЗ УСТОЙЧИВОСТИ ПРОЦЕССА ЗАТВЕРДЕВАНИЯ В ОГРАНИЧЕННОЙ ОБЛАСТИ ПРИ НАЛИЧИИ КОНВЕКЦИИ В ЖИДКОСТИ

© 2024 г. Маковеева Е.В.[1], Корозникова И.Е.[1], Глебова А.Е.[1], Иванов А.А.[1], Александров Д.В.[1, *]

[1]Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия
**E-mail: dmitri.alexandrov@urfu.ru*

Поступила в редакцию 05.09.2023
После доработки 13.10.2023
Принята к публикации 02.12.2023

Данное исследование посвящено линейному анализу морфологической/динамической неустойчивости процесса направленного затвердевания в ограниченной области пространства при наличии конвекции в расплаве. Разработана линейная теория морфологической неустойчивости стационарного процесса направленной кристаллизации с плоской границей раздела фаз «твердое тело – жидкость», с учетом наличия конвекции в жидкости. Выписаны уравнения для возмущений температурного поля и межфазной границы, построено решение этих уравнений, выведено дисперсионное соотношение. Его анализ показал существование морфологической неустойчивости в широком диапазоне волновых чисел и при различных параметрах кристаллизующейся системы. Существование этой неустойчивости обусловлено возмущениями, которые поступают на границу раздела «твердое тело – жидкость» от охлаждаемой стенки через твердую фазу. Помимо этого, в работе показано, что плоская граница раздела «твердое тело – жидкость» может быть неустойчива к динамическим возмущениям, то есть к возмущениям с нулевым волновым числом (к возмущениям установившейся скорости затвердевания). Также имеется ветвь устойчивого решения для динамических возмущений. Кристаллизующаяся система может выбрать одну из этих ветвей (неустойчивую или устойчивую) в зависимости от действия конвекции. Результатом морфологической и динамической неустойчивости является появление двухфазной области перед плоской границей раздела «твердое тело – жидкость». Поэтому следующим шагом в работе стал анализ динамической неустойчивости стационарной кристаллизации с двухфазной областью. Эта область была заменена на поверхность разрыва, располагающуюся между чисто твердой и жидкой фазами. Анализ уравнений для амплитуд возмущений выявил существование динамической неустойчивости для широкого диапазона скоростей кристаллизации. Такая неустойчивость порождается возмущениями в твердом материале у охлаждаемой стенки и распространяется вплоть до границы раздела фаз. При достижении определенной скорости кристаллизации происходит би-

фуркация решений, что приводит к существованию одновременно неустойчивой и устойчивой ветвей. Система же, как и ранее, выбирает одну из них в зависимости от влияния конвекции. В общем случае, кристаллизующаяся система может быть морфологически/динамически неустойчива к малым возмущениям, которые поступают на границу раздела фаз вследствие флуктуаций тепломассообменного оборудования (например, флуктуаций температуры на охлаждаемой границе).

Ключевые слова: направленная кристаллизация, конвекция, линейный анализ устойчивости, аналитические решения.

DOI: 10.31857/S0235010624020048

ВВЕДЕНИЕ

Динамика межфазной границы (фронта кристаллизации), разделяющей твердую и жидкую фазы, определяет образование и рост элементов твердой фазы: например, рост дендритных кристаллов, перераспределение и поглощение примесей, а также рост и развитие различных микроструктур (это могут быть ячеистые, полосчатые, нерегулярные микроструктуры и микроструктуры смешанного типа) в кристаллизующемся материале [1–7]. Определив закономерности, которые отвечают за формирование различных типов микроструктур, а также за переходы между их различными типами, можно управлять процессом структурообразования с помощью физических и режимных параметров процесса затвердевания. Так, воздействовать на структурообразование материалов можно с помощью флуктуаций различных физических величин. Примерами флуктуаций могут быть: колебания температуры, постоянно присутствующие в природе; гидродинамические колебания скорости течения расплава, которые могут быть вызваны конвекцией; колебания концентрации примесей в жидкости, вызванные поступлением примесей извне или гидродинамическими колебаниями; механические колебания всей кристаллизующейся системы, вызванные сейсмическими процессами в природе или естественным фоном деятельности человека в лабораторной установке, и т.д. Такие флуктуации приводят к возмущениям температурных и градиентных полей, гидродинамическим возмущениям скорости движения жидкости, а это, в свою очередь, приводит к возмущению межфазной границы «твердое тело – жидкость» (фронта кристаллизации). Морфологические и динамические возмущения развиваются из-за неоднородности температурных и концентрационных полей, конвекции или концентрационного переохлаждения. В результате такие возмущения полностью меняют процесс затвердевания и приводят к формированию различных микроструктур. К примеру, морфологическая неустойчивость фронта кристаллизации влияет на развитие ячеистых структур, динамическая неустойчивость приводит к образованию полосчатых структур, а эволюция «дендритного леса» в целом порождает двухфазную область [8–13]. Линейный анализ морфологической устойчивости с приложениями к проблемам кристаллизации впервые был развит Маллинзом и Секеркой [14–16]. Затем их

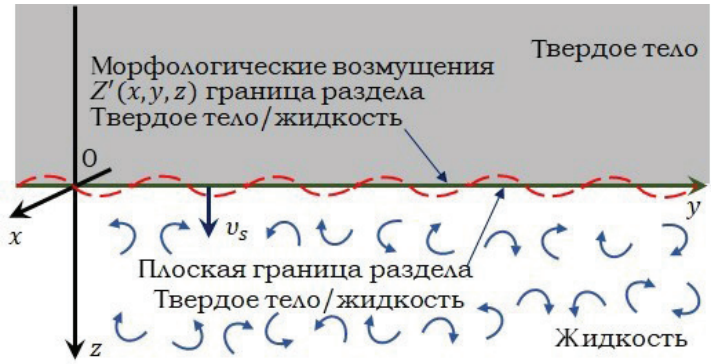
методика была расширена на описание различных особенностей процессов затвердевания [17–24].

Конвективные течения жидкости могут по-разному сказываться на процессе фазового превращения из жидкого состояния в твердое. Так, они могут выравнивать распределения температуры и концентрации в жидкости или, наоборот, создавать конвективные или холодные/горячие области в определенных местах у границы раздела «твердое тело – жидкость» [25, 26]. В результате этого в более холодных областях создаются благоприятные условия для роста твердой фазы и возникает морфологическая неустойчивость. На данный момент влияние конвекции на морфологическую/динамическую неустойчивость мало исследовано из-за сильной нелинейности математических моделей, разнообразия конвективных потоков и различных граничных условий на межфазной поверхности при наличии конвекции. Предыдущие исследования рассматривали либо определённые типы конвективных течений, либо течения в узком диапазоне параметров процесса. Например, для исследования влияния плоскопараллельного течения жидкости на устойчивость межфазной границы в работе [27], были применены упрощенные уравнения тепло- и массопереноса. В работах [28–30] авторы применили технику пограничного слоя для исключения малых нелинейных членов и упрощения уравнений модели. В работе [31] рассматривались пространственно-периодические течения жидкости для моделирования локализованных морфологических структур. Недавно для изучения влияния течений жидкости на устойчивость направленной кристаллизации была развита математическая модель в неограниченной области пространства, основанная на законах кондуктивного тепло- и массопереноса [32, 33]. Эта теория продемонстрировала, что дисперсионное соотношение и кривая нейтральной устойчивости при наличии конвекции существенно зависят от скорости расширения на границе раздела фаз.

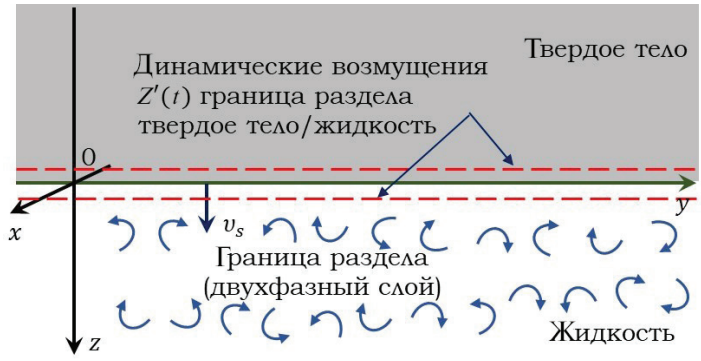
В настоящем исследовании теория морфологической/динамической устойчивости при наличии конвективных потоков получила дальнейшее развитие. Одним из основных факторов новизны является учет ограниченности области затвердевания. Это позволяет построить развивающиеся во времени (неустойчивые) решения для возмущений, поступающих из твердой и жидкой областей системы (например, от охлаждаемых границ в лабораторных установках или природных процессах). В данном исследовании рассмотрены и проанализированы два типа неустойчивости: морфологическая и динамическая. Сначала рассматривается квазистационарный процесс кристаллизации с плоской границей раздела твердой и жидкой фаз. В результате развития морфологической неустойчивости плоский фронт затвердевания разрушается и образуется двухфазная область, находящаяся между чисто твердой и жидкой фазами. Этот теоретический вывод, основанный на анализе модели, подтверждается экспериментами, описанными в работе [34]. Двухфазная область может также оказаться неустойчивой к динамическим возмущениям постоянной скорости кристаллизации. Поэтому далее в работе был проведен анализ динамической неустойчивости квазистационарного процесса затвердевания с двухфазной областью. Этот анализ показал, что динамические возмущения неустойчивы и приводят к флуктуациям скорости направленного затвердевания.

Процесс затвердевания с плоской границей раздела твердой и жидкой фаз

Рассмотрим направленную кристаллизацию бинарной жидкости (расплава или раствора) с постоянной скоростью при наличии плоской межфазной границы раздела. Пусть ось z совпадает с направлением затвердевания, которое вызвано определенными температурными градиентами в твердой и жидкой фазах. Рассматриваемый процесс начинается после охлаждения жидкости сверху и контролируется интенсивной конвекцией в жидкости, рис. 1*а*. Используя систему координат, которая движется с постоянной скоростью υ_s вместе с границей раздела фаз, имеем следующие уравнения теплопереноса в твердом теле и жидкости:



а



б

Рис. 1. *а* – Схема морфологически неустойчивой кристаллизации с плоской границей раздела «твердое тело-жидкость»; *б* – схема динамически неустойчивой кристаллизации с поверхностью разрыва.

$$\frac{\partial \vartheta_l}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \vartheta_l = D_l \nabla^2 \vartheta_l + \upsilon_s \frac{\partial \vartheta_l}{\partial z}, z > Z'(t), \tag{1}$$

$$\frac{\partial \vartheta_s}{\partial t} = D_s \nabla^2 \vartheta_s + \upsilon_s \frac{\partial \vartheta_s}{\partial z}, z < Z'(t), \tag{2}$$

где ϑ_l и ϑ_s – температуры в жидкой и твердой фазах, t – время, $\mathbf{u}$ – вектор скорости жидкости, D_l и D_s – коэффициенты теплопроводности в жидкой и твердой фазах, υ_s – скорость кристаллизации, $Z'(t)$ – координата границы раздела между твердым телом и жидкостью ($Z'(t) = 0$ в случае невозмущенного стационарного режима затвердевания). При достаточно интенсивной конвекции в жидкости, которая выравнивает распределение концентрации, процесс диффузии примеси можно не рассматривать [34].

На границе раздела фаз температура равна температуре фазового превращения, которая складывается из температуры фазового перехода чистого вещества ϑ_* и температурной поправки на кривизну границы раздела ГН. Также разность тепловых потоков определяет выделяющуюся теплоту кристаллизации L_V [34,35], то есть:

$$\vartheta_{int} = \vartheta_l = \vartheta_s = \vartheta_* + \Gamma \mathrm{H}, \; z = Z'(t), \tag{3}$$

$$\begin{aligned} &\left[c_l \left(\vartheta_\infty - \vartheta_l \right) + L_V \right] \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = \\ &= k_s \mathbf{n} \cdot \nabla \vartheta_s - f\left(\vartheta_l \right), z = Z'(t), \end{aligned} \tag{4}$$

где $\Gamma = \vartheta_* \gamma / L_V$ – коэффициент Гиббса, H– кривизна границы раздела, γ – межфазная энергия, L_V – параметр скрытой теплоты, $\mathbf{n}$ – вектор нормали к границе раздела, c_l – удельная теплота, ϑ_∞ – температура жидкости вдали от фронта кристаллизации, k_s – теплопроводность твердого тела, $f\left(\vartheta_l \right)$ – конвективный тепловой поток. Следует отметить, что в случае плоской границы раздела между твердым телом и жидкостью $\mathrm{H} = 0$, а при малых морфологических возмущениях (линейная теория) $\mathrm{H} \approx \nabla^2 Z'(t)$. Конвективный тепловой поток $f\left(\vartheta_l \right)$ задается в следующем виде [34, 35]:

$$f\left(\vartheta_l \right) = 2^{4/3} \lambda k_l \left(\frac{\alpha\left(\vartheta_l \right) g}{D_l \varkappa} \right)^{1/3} \left(\vartheta_\infty - \vartheta_l \right)^{4/3}, \tag{5}$$

где λ – безразмерная постоянная, k_l – теплопроводность жидкости, $D_l = k_l / c_l$, $\varkappa$ – кинематическая вязкость, α – коэффициент теплового расширения, g – ускорение свободного падения. Отметим, что α может быть функцией от ϑ_l: $\alpha\left(\vartheta_l \right) = 10^{-4} \left(2.25 + 0.15 \vartheta_l \right)$ – для изопропанола [34].

Морфологическая неустойчивость

Предположим, что теплообмен преобладает в направлении пространственной оси z. В этом случае установившиеся профили температуры в жидкой и твердой фазах имеют вид $\vartheta_{l0} = \vartheta_{l0}(z)$ и $\vartheta_{s0} = \vartheta_{s0}(z)$ (подстрочный индекс «0» обозначает установившиеся решения).

Из граничного условия (4) находим стационарный градиент температуры в твердом теле при $z = 0$:

$$\frac{d\vartheta_{s0}}{dz} = G_s = \frac{\left[c_l\left(\vartheta_\infty - \vartheta_{int}\right) + L_V\right]\upsilon_s + f\left(\vartheta_{int}\right)}{k_s}, \quad z = 0, \tag{6}$$

где $\vartheta_{int} = \vartheta_*$ для плоской границы раздела твердой и жидкой фаз.

Используя уравнения теплопроводности (1) и (2), находим вторые производные при $z = 0$ (здесь используется условие прилипания жидкости к твердому телу, т.е. $\mathbf{u} = 0$ при $z = 0$) в виде

$$\frac{d^2\vartheta_{s0}}{dz^2} = -\frac{\upsilon_s G_s}{D_s}, \quad \frac{d^2\vartheta_{l0}}{dz^2} = -\frac{\upsilon_s G_l}{D_l}, \quad z = 0, \tag{7}$$

где $G_l = d\vartheta_{l0}/dz$ при $z = 0$.

Далее, морфологически возмущаем плоскую границу раздела «твердое тело – жидкость» Далее, морфологически возмущаем плоскую границу раздела «твердое тело — жидкость» в виде $Z' = Z_A E(x,y,t)$ с $E = \exp\left(ik_x x + ik_y y + \varpi t\right)$. Здесь x и y — декартовы координаты, направленные перпендикулярно оси затвердевания z, k_x и k_y — волновые числа возмущений вдоль этих направлений, i — мнимая единица, ϖ — частота возмущений. Возмущение границы раздела фаз Z' соответствует температурным возмущениям в твердой и жидкой фазах: $\vartheta_s' = \vartheta_{sA} E\exp(\beta_s z)$, $\vartheta_l' = \vartheta_{lA} E\exp(\beta_l z)$, где Z_A, ϑ_{sA} и ϑ_{lA} — амплитуды возмущений, а β_s и β_l — коэффициенты нарастания/затухания возмущений, которые найдены ниже. Из рассматриваемой линейной теории следует, что $|\vartheta_s'| \ll \vartheta_{s0}$ и $|\vartheta_l'| \ll \vartheta_{l0}$.

Далее разлагаем граничные условия (3) и (4) в ряд Тейлора в окрестности невозмущенной границы раздела при $z = 0$. Учитывая только линейные члены в возмущениях, получаем следующие выражения при $z = 0$ (см. Приложение)

$$\vartheta_{sA} - \vartheta_{lA} + \left(G_s - G_l\right)Z_A = 0, \tag{8}$$

$$\vartheta_{lA} + \left(\Gamma k_h^2 + G_l\right)Z_A = 0, \tag{9}$$

$$k_s\beta_s\vartheta_{sA}+\left(c_l\upsilon_s-f'\right)\vartheta_{lA}-$$
$$-\left(\frac{k_s\upsilon_s G_s}{D_s}+f'G_l-c_l\upsilon_s G_l+c_l\varpi\left(\vartheta_\infty-\vartheta_{int}\right)+L_V\varpi\right)Z_A=0, \tag{10}$$

где $k_h^2=k_x^2+k_y^2$ и $f'=df/d\vartheta_l$ при $\vartheta_l=\vartheta_{int}$, то есть

$$f'=2^{4/3}\lambda k_l\left[\frac{\alpha\left(\vartheta_{int}\right)g}{D_l\varkappa}\left(\vartheta_\infty-\vartheta_{int}\right)\right]^{1/3}\times$$
$$\times\left(\frac{5\cdot10^{-6}\left(\vartheta_\infty-\vartheta_{int}\right)}{\alpha\left(\vartheta_{int}\right)}-\frac{4}{3}\right). \tag{11}$$

Уравнения теплопереноса (1) и (2) приводят к следующим соотношениям при $z=0$

$$\left(\varpi-\beta_l\upsilon_s-\left(\beta_l^2-k_h^2\right)D_l\right)\vartheta_{lA}+U_z G_l Z_A=0, \tag{12}$$

$$\beta_s=-\frac{\upsilon_s}{2D_s}\left(1\pm\sqrt{1+\frac{4D_s}{\upsilon_s^2}\left(\varpi+k_h^2D_s\right)}\right), \tag{13}$$

где $U_z=-\partial u_{z0}/\partial z$ при $z=0$ – скорость расширения (u_{z0} – установившаяся z – компонента скорости жидкости).

Объединяя уравнения (9) и (12), получаем β_l в виде:

$$\beta_l=-\frac{\upsilon_s}{2D_l}\left(1\pm\sqrt{1+\frac{4D_l}{\upsilon_s^2}\left(\varpi+k_h^2D_l-\frac{U_z G_l}{\Gamma k_h^2+G_l}\right)}\right). \tag{14}$$

Также важно отметить, что знаки $\pm$ в выражениях для β_s и β_l определяют, будут ли возмущения затухать или же усиливаться. К примеру, если возмущения возникают в твердой фазе при $z<0$ на некотором расстоянии от межфазной границы $z=0$, то они будут затухать или усиливаться, в случае отрицательного или положительного значения β_s. Если же возмущения возникают в жидкости вдали от межфазной границы и распространяются в ее сторону, то они будут затухать или усиливаться в зависимости от знака β_l (отрицательного или положительного). В реальных лабораторных установках или природных процессах это соответствует ограниченной области процесса кристаллизации: твердые стенки расположены на определенных расстояниях $z<0$ в твердом материале и $z>0$ в жидкой фазе.

Из уравнений (8) и (9) получаем дисперсионное соотношение:

$$\varpi\Pi_2\left(\varpi,k_h\right)=\Pi_1\left(\varpi,k_h\right), \tag{15}$$

где

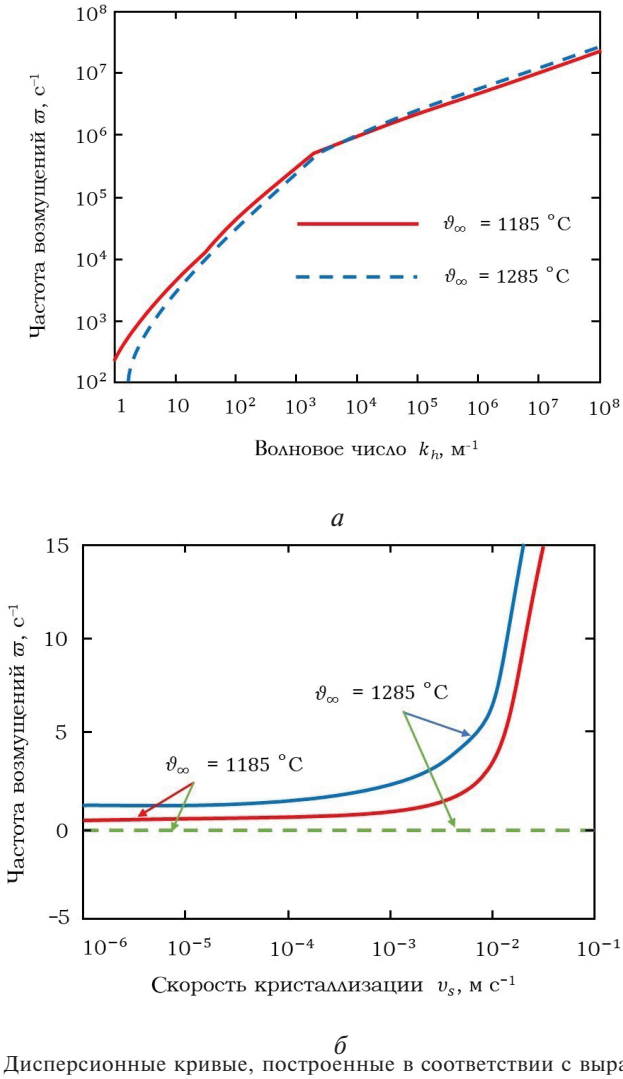
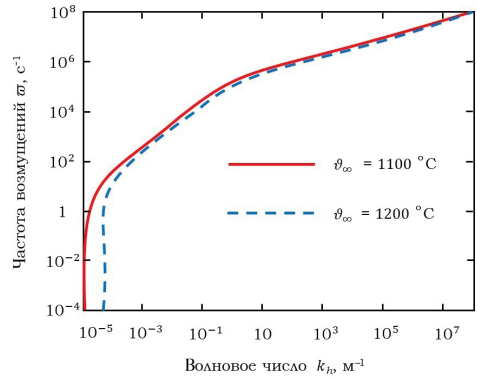


Рис. 2. *а* – Дисперсионные кривые, построенные в соответствии с выражением (15), $v_s=10^{-6}$ м/с; *б* – частота возмущений в зависимости от скорости кристаллизации при $k_h=0$ (динамические возмущения), показанная в соответствии с выражением (15). Для каждой температуры имеется два решения: одно решение устойчивое, при $\varpi=0$, второе — неустойчивое, при $\varpi>0$. Физические параметры взяты для расплавленного металла из работы [34] (табл. 1).

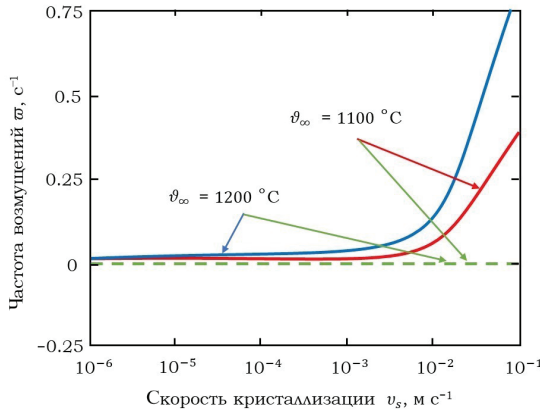
$$\Pi_1\left(\varpi,k_h\right)=f'\Gamma k_h^2-c_l\upsilon_s\Gamma k_h^2-$$
$$-\frac{k_s\upsilon_s G_s}{D_s}-k_s\beta_s\left(\Gamma k_h^2+G_s\right), \qquad (16)$$

$$\Pi_2\left(\varpi,k_h\right)=c_l\left(\vartheta_\infty-\vartheta_{int}\right)+L_V. \qquad (17)$$

На рис. 2*а* приведены дисперсионные кривые, рассчитанные в соответствии с соотношением (15) для расплавленного металла, параметры которого приведены



а



б

Рис. 3. *а* – Дисперсионные кривые, построенные в соответствии с выражением (15), $v_s=10^{-6}$ м/с; *б* – частота возмущения в зависимости от скорости кристаллизации при $k_h=0$ (динамические возмущения), показанная в соответствии с выражением (15). Для каждой температуры имеется два решения, одно решение устойчивое, при $\varpi=0$, второе — неустойчивое, при $\varpi>0$. Физические параметры взяты для магмы [34] (табл.1).

Таблица 1. Теплофизические параметры.

Параметр	Металл	Магма
Температура жидкости вдали от фронта кристаллизации, ϑ_∞	1185 °C	1100 °C
Температура фазового перехода чистого вещества, ϑ_*	1085 °C	1000 °C
Удельная теплота, c_l	$3\cdot10^7$ Дж/м³·°C	2×10^6 Дж/м³·°C
Теплопроводность твердого тела, k_s	244 Вт/м·°C	1 Вт/м·°C
Теплопроводность жидкости, k_l	166 Вт/м·°C	1 Вт/м·°C
Параметр скрытой теплоты, L_V	$1700\cdot10^6$ Дж/м³	$1350\cdot10^6$ Дж/м³
Кинематическая вязкость, $\varkappa$	$0.004\cdot10^{-4}$ м²/с	10^{-2} м²/с
Коэффициент теплового расширения, α	$2\cdot10^{-4}$ °C^{-1}	$5\cdot10^{-5}$ °C^{-1}
Безразмерная постоянная, λ	0.056	0.056
Коэффициент диффузии, D_C	10^{-9} м²/с	$2\cdot10^{-11}$ м²/с
Коэффициенты теплопроводности в жидкой фазе, D_l	$5.533\cdot10^{-6}$ м²/с	$5\cdot10^{-7}$ м²/с
Коэффициенты теплопроводности в твердой фазе,	$8.414\cdot10^{-6}$ м²/с	$5\cdot10^{-7}$ м²/с

в работе [34]. Анализ уравнения (15) показал наличие только вещественных решений. Из графиков видно, что процесс направленной кристаллизации при наличии интенсивной конвекции является морфологически неустойчивым (ϖ растет с увеличением волнового числа k_h и уменьшением температуры жидкости вдали от фронта кристаллизации ϑ_∞, см. рис. 2*a* и рис. 3*a*). Такое поведение следует из $\varpi > 0$, рассчитанного в широком диапазоне волновых чисел k_h. При этом для всех точек, показанных на рис. 2*a*, значение β_s отрицательно. Физически это означает, что возмущение температуры твердой фазы, возникающее на некотором расстоянии от фронта кристаллизации при $z < 0$ (например, флуктуация температуры на охлаждаемой стенке), уменьшается с ростом z и возмущает границу раздела «твердое тело – жидкость» при $z = 0$. Также важно отметить, что $\beta_s < 0$ и $\beta_l < 0$ описывают затухающие возмущения, распространяющиеся от охлаждаемой границы при $z < 0$ в жидкую фазу при $z > 0$.

На рис. 3*a* приведены дисперсионные кривые, рассчитанные аналогично металлу из уравнения (15), для магмы, данные также были взяты из работы [34]

и представлены в табл. 1. На рис. 2*а* и рис. 3*а* видно, что поведение кривых подобно для металла и магмы. Значения $\beta_s < 0$ и $\beta_l < 0$, как и в случае металла, описывают затухающие возмущения, распространяющиеся от охлаждаемой твердой стенки к жидкости. Другими словами, при кристаллизации двух разных систем частота возмущений ϖ в зависимости от волнового числа k_h имеет подобное поведение.

Обнаруженная морфологическая неустойчивость является следствием возмущений, возникающих на охлаждаемой стенке при $z < 0$. В случае бесконечной области кристаллизации такого решения не существует из-за требования затухания возмущений при $z \to -\infty$. Следствием обнаруженной неустойчивости является развитие морфологических возмущений в жидкости на границе раздела фаз и появление двухфазной области, заполненной дендритоподобными структурами, как это было показано в экспериментах [34].

Кроме морфологических возмущений с $k_h \neq 0$, в кристаллизующейся системе могут существовать и динамические возмущения с $k_h = 0$, представляющие собой возмущения установившейся скорости кристаллизации υ_s. На рис. 2*б* показана зависимость частоты возмущений от скорости υ_s при двух различных температурах ϑ_∞, для металла, а на рис. 3*б* представлена та же зависимость при двух разных температурах, для магмы. Были обнаружены две ветви решения, одна из которых является динамически неустойчивой ($\varpi > 0$, сплошная линия на рисунках 2*б* и 3*б*), а другая – устойчивой ($\varpi = 0$, пунктирная линия на рисунках 2*б* и 3*б*). Отметим, что корень $\varpi = 0$ из уравнения (15) находится аналитически для динамических возмущений при $k_h = 0$. Кроме этого, $Z' = Z_A$ и $dZ'/dt = 0$, т.е. система имеет нулевое возмущение скорости и кристаллизуется с установившейся скоростью υ_s. Какая из этих двух ветвей решения будет реализована, зависит от того, усиливает ли конвекция (создавая неоднородности в полях температуры и концентрации) или ослабляет (выравнивая температуру и концентрацию) динамические возмущения вблизи границы раздела твердое тело/жидкость. Ответ на этот вопрос зависит от характера конвективных течений и расположения кристаллизующегося объекта.

Отметим, что двухфазная область часто возникает в различных геофизических явлениях замерзания льда и застывания магмы, а также в металлургических и химических процессах равновесной и неравновесной кристаллизации расплавов и растворов [36–44]. Этим объясняется необходимость разработки теории динамической устойчивости таких процессов под действием конвекции. При возникновении двухфазной области между чисто твердой и жидкой фазами малые температурные возмущения могут вызвать новый сценарий колебательной кристаллизации, когда двухфазный слой динамически неустойчив и колеблется вблизи своей установившейся скорости затвердевания. Такой процесс существенно изменяет распределение примеси в твердом материале и приводит к явлению слоистой ликвации примеси, возникающей в результате динамических колебаний двухфазной области. Для описания этого эффекта в рамках интенсивной конвекции в жидкости далее развита модель с поверхностью разрыва и выполнен анализ ее устойчивости к малым динамическим возмущениям. Эта поверхность разрыва отражает свойства реальной двухфазной области с помощью нового граничного условия. Данное условие представляет собой равенство градиента температуры фазового перехода и градиента температуры жидкой фазы на границе раздела. Кроме этого, это условие определяет отсутствие

переохлаждения перед поверхностью разрыва (двухфазной областью) в жидкости. Такой анализ динамической устойчивости проводится ниже в духе ранее разработанных теорий без конвекции [42, 43].

Динамическая неустойчивость затвердевания с двухфазной областью

Рассмотрим узкую квазиравновесную двухфазную область, возникающую перед плоской межфазной границей между твердым телом и жидкостью. Переохлаждение в двухфазной зоне полностью компенсируется скрытой теплотой. Для простоты анализа мы далее заменяем двухфазную область поверхностью разрыва между чисто твердой и чисто жидкой фазами [44, 45] (рис. 1*б*). Отметим также, что конвекция заторможена в междендритных промежутках, что приводит к накоплению там примеси. Поэтому в математическую модель направленной кристаллизации с двухфазной областью (поверхностью разрыва) требуется включить концентрацию примеси C_l бинарной системы. Таким образом, модель состоит из уравнений теплопроводности (1), (2) и уравнения диффузии примеси в жидкой фазе (диффузией примеси в твердом материале пренебрегаем):

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} + \mathbf{u}\cdot\nabla C_l = D_C\nabla^2 C_l + \upsilon_s\frac{\partial C_l}{\partial z}, \quad z > Z'(t), \tag{18}$$

где D_C – коэффициент диффузии [46, 47], а $Z'(t)$ – определяет динамические возмущения границы раздела, которая заменяет двухфазную область ($Z' = 0$, если рассматривается стационарный сценарий кристаллизации). Поскольку температура фазового перехода зависит от концентрации примеси, граничное условие (3) следует переписать следующим образом:

$$\vartheta_{int} = \vartheta_l = \vartheta_s = \vartheta_* + F(C_l), z = Z'(t), \tag{19}$$

где функция $F(C_l)$ определяется из фазовой диаграммы ($F(C_l) = mC_l$ для линейной фазовой диаграммы, m – равновесный наклон линии ликвидус).

Условие теплового баланса (4) выполняется на границе раздела $Z'(t)$. Для замыкания математической модели необходимо записать условие квазиравновесности границы раздела фаз [44, 45]:

$$\frac{\partial\vartheta_l}{\partial z} = F'(C_l)\frac{\partial C_l}{\partial z}, z = Z'(t), \tag{20}$$

где $F'(C_l) = dF/dC_l$ и $F' = m$ в случае линейного уравнения линии ликвидус.

В результате математическая модель направленной кристаллизации с двухфазной областью, замененной на поверхность разрыва фаз, состоит из уравнений (1), (2), (18), и граничных условий (4), (19) и (20).

В случае стационарного процесса затвердевания также выполняются выражения (6) и (7) при $Z' = 0$. Из уравнения диффузии примеси (18) при $z = 0$, получаем

$$\frac{d^2C_{l0}}{dz^2} = -\frac{\upsilon_s G_C}{D_C}, G_C = \frac{dC_{l0}}{dz}. \tag{21}$$

Подстрочным индексом «0», как и ранее, обозначены решения, соответствующие установившемуся состоянию.

Двухфазная область может быть динамически неустойчивой, в то время как ее скорость кристаллизации колеблется около квазистационарной скорости υ_s. Поэтому ниже анализируется динамическая неустойчивость кристаллизации с поверхностью разрыва (рис. 1*б*). В этом случае возмущения имеют тот же вид с $E = \exp(\varpi t)$ и $C_l' = C_{lA} E \exp(\beta z)$, где β – коэффициент нарастания/затухания возмущений для концентрации примеси, а C_{lA} – амплитуда возмущений концентрации примеси.

Подставляя теперь возмущения в граничные условия (4), (19) и (20), получаем четыре уравнения для амплитуд возмущений при $z = 0$. Как и прежде, сейчас выполняются уравнения (8) и (10). Два других уравнения имеют следующий вид:

$$\vartheta_{lA} - F' C_{lA} + \left(G_l - F' G_C\right) Z_A = 0, \tag{22}$$

$$\begin{aligned} &\beta_l \vartheta_{lA} - \left(\beta F' + G_C F''\right) C_{lA} + \\ &+ \left(\frac{\upsilon_s G_C F'}{D_C} - \frac{\upsilon_s G_l}{D_l} - G_C^2 F''\right) Z_A = 0, \end{aligned} \tag{23}$$

где $F'' = 0$ в случае линейного уравнения линии ликвидус.

Уравнения (1), (2) и (18) позволяют выразить $\beta_l(\varpi)$, $\beta_s(\varpi)$ и $\beta(\varpi)$ следующим образом:

$$\beta_l = -\frac{\upsilon_s}{2D_l}\left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{4D_l}{\upsilon_s^2}\left(\varpi + \frac{U_z G_C}{a}\right)}\right), \tag{24}$$

$$\beta_s = -\frac{\upsilon_s}{2D_s}\left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{4D_s \varpi}{\upsilon_s^2}}\right), \tag{25}$$

$$\beta = -\frac{\upsilon_s}{2D_C}\left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{4D_C}{\upsilon_s^2}\left(\varpi + \frac{U_z G_C}{b}\right)}\right), \tag{26}$$

где

$$b(\varpi) = -\frac{k_s \beta_s \left(F' G_C - G_s\right) + \left(c_l \upsilon_s - f'\right) G_C F' - \left(L_V + c_l\left(\vartheta_\infty - \vartheta_{int}\right)\right)\varpi - k_s \upsilon_s G_s / D_s}{k_s \beta_s F' + \left(c_l \upsilon_s - f'\right) F'},$$

$$a(\varpi) = F'\left[b(\varpi) + G_C\right] - G_l.$$

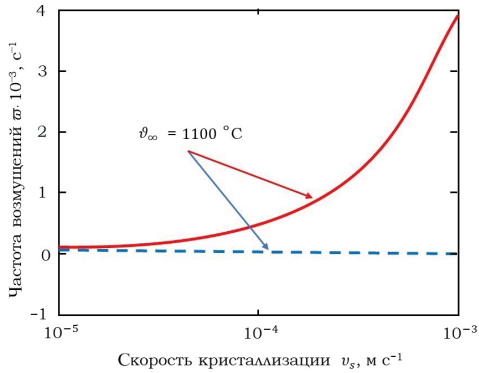


Рис. 4. Зависимость частоты динамических возмущений от скорости кристаллизации в соответствии с выражением (27) для магмы. Физические параметры магмы приведены в табл. 1 по данным работ [34, 46].

Как и ранее, знаки β_l, β_s и β определяют направление эволюции возмущений, распространяющихся к границе раздела из твердой или жидкой фаз.

Теперь, исключая амплитуды возмущений из уравнений (8), (10), (22) и (23), получаем следующее выражение для ϖ:

$$\frac{\upsilon_s G_C F' / D_C - \upsilon_s G_l / D_l - G_C^2 F'' + \beta_l \left(F' G_C - G_l \right)}{\left(\beta_l - \beta \right) F' - G_C F''} + b\left(\varpi \right) = 0. \qquad (27)$$

Знак ϖ (действительной части ϖ) в уравнении (27) определяет устойчивость/неустойчивость процесса к малым динамическим возмущениям (устойчивость наступает при $\varpi < 0$, а неустойчивость – при $\varpi > 0$).

Анализ выражения (27) для магмы показал наличие только вещественных корней. Они показаны на рис. 4 в плоскости $\varpi\left(\upsilon_s\right)$ для различных температур ϑ_∞ (значения расчетных параметров для магмы взяты из работ [34, 46, 47], табл. 1).

На рисунке отражено, что частота возмущений положительна. Двигаясь слева направо вдоль горизонтальной оси υ_s, мы видим, что ϖ имеет два решения. Оба решения означают неустойчивость. Первое решение (положительные значения ϖ, сплошная линия), означает неустойчивость и увеличивается при увеличении скорости кристаллизации. Второе решение (также положительные значения ϖ, пунктирная линия), показывает неустойчивое решение, которое асимптотически приближается к нулю при увеличении скорости кристаллизации. Важным моментом является то, что $\beta_s < 0$, $\beta_l < 0$ и $\beta < 0$ для всех точек на рис. 4. Как и ранее, это означает, что возмущение, возникающее на охлаждаемой стенке при $z < 0$, распространяется через границу раздела фаз (поверхность разрыва) в жидкую фазу и приводит к динамическим возмущениям. В обоих случаях конвекция будет создавать локальные неоднородности полей температуры и концентрации, которые в свою очередь будут приводить к неустойчивости.

Аналогичное поведение частоты возмущений было получено для расплавленного металла: были найдены две кривые, означающие неустойчивость. То есть возмущение, исходящее от охлаждаемой стенки, будет усиливаться ($\varpi > 0$, неустойчивость) за счет конвекции. В результате разрывная граница становится динамически неустойчивой и квазистационарный процесс кристаллизации с постоянной скоростью υ_s разрушается.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе было изучено влияние малых морфологических/динамических возмущений на процесс направленной кристаллизации в конечной области с учетом интенсивной конвекции в жидкости. Прежде всего, исследован вопрос об устойчивости плоской границы раздела твердое тело/жидкость, движущейся в установившемся режиме, к малым морфологическим возмущениям поля температуры и скорости кристаллизации. Для этого выведено дисперсионное соотношение, определяющее частоту возмущений, как функцию волнового числа и других параметров системы. Анализ этого соотношения для расплавленного металла и магмы показал, что ϖ положительна в широком диапазоне волновых чисел. Этому решению соответствуют отрицательные значения коэффициентов усиления/затухания возмущений β_s и β_l. Отрицательные знаки этих коэффициентов свидетельствуют о том, что морфологические возмущения распространяются вдоль направления кристаллизации z. А именно, при колебаниях температуры на охлажденной стенке (при $z < 0$) на некотором расстоянии от границы раздела фаз это возмущение распространяется на жидкую фазу и делает границу раздела твердое тело/жидкость морфологически неустойчивой. Кроме того, показано, что плоская граница раздела твердое тело/жидкость может быть неустойчива к динамическим возмущениям с нулевым волновым числом (возмущениям установившейся скорости кристаллизации υ_s) в широком диапазоне υ_s. Отметим, что здесь неустойчивая ветвь решений одновременно сосуществует с устойчивой. При этом кристаллизующийся расплав/раствор выбирает одну из них в зависимости от влияния конвекции, которая может либо усиливать, либо ослаблять динамические возмущения, исходящие от твердой фазы (охлаждаемой стенки). Эта морфологическая/динамическая неустойчивость развивается со временем и приводит к образованию двухфазного слоя между чисто твердым материалом и жидкостью.

Для изучения устойчивости такого процесса к динамическим возмущениям (возмущениям установившейся скорости кристаллизации с двухфазной зоной) проведен линейный анализ динамической устойчивости с конвекцией. Результатом этой теории, в которой двухфазная область заменена поверхностью разрыва, является уравнение для частоты динамических возмущений в зависимости от физических параметров системы. Анализ этого уравнения показал, что динамические возмущения могут эволюционировать от твердого тела к жидкому материалу. А именно, если возмущение возникает на охлаждаемой стенке при $z < 0$, то оно уменьшается и распространяется в жидкую фазу при $z > 0$ при $\beta_s < 0, \beta_l < 0$ и $\beta < 0$. Это возмущение может эволюционировать со временем и приводить к динамической неустойчивости в широком диапазоне скоростей кристаллизации υ_s. Система имеет две ветви решений (обе неустойчивые), которые сосуществуют одновременно. Конвекция в расплаве

приводит к усилению динамических возмущений. В результате поверхность разрыва, имитирующая двухфазную область, оказывается неустойчивой к малым динамическим возмущениям скорости кристаллизации, т.е. устойчивый процесс с двухфазной областью разрушается. В системе образуется более сложный сценарий кристаллизации с неустановившейся скоростью и переменной толщиной двухфазного слоя.

В результате проведенного исследования можно сделать следующие основные выводы. Плоская граница раздела твердое тело/жидкость (двухфазная область) может оказаться неустойчивой к малым морфологическим/динамическим возмущениям при наличии интенсивной конвекции в жидкости, если рассматривать конечную область кристаллизации. Ключевым фактором здесь является конечность области кристаллизации, ограниченной твердыми стенками, что характерно для любого реального процесса, происходящего в природе, лаборатории или на промышленном предприятии. А именно, зарождение возмущений происходит на твердых стенках из-за флуктуаций тепломассообменного оборудования, которые приводят к морфологической/динамической неустойчивости. Если бы мы проводили данное исследование в бесконечной области, то были бы вынуждены отбросить решения, найденные из условий ограниченности возмущений на бесконечном расстоянии от границы раздела фаз. Это позволяет сделать вывод о том, что конечность области кристаллизации и ее протяженность являются основными факторами, влияющими на морфологическую/динамическую неустойчивость.

Это означает, что ряд теорий устойчивой/неустойчивой кристаллизации с конвекцией (а возможно, и при ее отсутствии) необходимо пересмотреть с учетом ограниченности области кристаллизации. К этому, например, относится теория устойчивого роста вершины дендрита, позволяющая отбирать установившуюся скорость роста кристалла в зависимости от кривизны и переохлаждения [48–52]. Другой пример – устойчивость границы раздела лед/океан к морфологическим возмущениям с учетом конечной глубины жидкости [53–55].

ФИНАНСИРОВАНИЕ

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант 23–19–00337).

ПРИЛОЖЕНИЕ

В этом разделе мы поясняем математический вывод граничных условий (8)–(10), используя в качестве примера граничное условие (8): $\vartheta_l = \vartheta_s$. Итак, разлагая это равенство в ряд Тейлора при $z = 0$ и сохраняя только линейные члены, получаем

$$\vartheta_{s0} + \left(\frac{d\vartheta_{s0}}{dz}\right)_{z=0} Z' + \vartheta_s' = \vartheta_{l0} + \left(\frac{d\vartheta_{l0}}{dz}\right)_{z=0} Z' + \vartheta_l', z = 0.$$

Отметим, что возмущения предполагаются достаточно малыми, чтобы все граничные условия можно было перенести на невозмущенную границу $z = 0$.

Тогда, имея в виду невозмущенное равенство $\vartheta_{s0} = \vartheta_{l0}$ при $z = 0$, приходим к следующему выражению:

$$\vartheta_s' - \vartheta_l' + \left(G_s - G_l\right) Z' = 0, z = 0.$$

Теперь, чтобы получить уравнение (8), учтем в этом равенстве возмущения ϑ_s', ϑ_l' и Z'. Аналогичным образом можно получить выражения (9) и (10).

Теперь покажем, как получить β_l из выражения (14). Для этого введем стационарные проекции скоростей жидкости u_{x0}, u_{y0}, u_{z0} и их морфологические возмущения u_x', u_y' и u_z'. Учитывая это, получаем $u_x = u_{x0} + u_x'$, $u_y = u_{y0} + u_y'$ и $u_z = u_{z0} + u_z'$. Теперь, принимая во внимание $\vartheta_{l0} = \vartheta_{l0}(z)$, получаем

$$\frac{\partial \vartheta_l'}{\partial t} - \upsilon_s \frac{d\vartheta_{l0}}{dz} - \upsilon_s \frac{\partial \vartheta_l'}{\partial z} + \left(u_{x0} + u_x'\right)\frac{\partial \vartheta_l'}{\partial x} + \left(u_{y0} + u_y'\right)\frac{\partial \vartheta_l'}{\partial y} + \left(u_{z0} + u_z'\right)\left(\frac{d\vartheta_{l0}}{dz} + \frac{\partial \vartheta_l'}{\partial z}\right) =$$

$$= D_l\left(\frac{d^2\vartheta_{l0}}{dz^2} + \frac{\partial^2 \vartheta_l'}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 \vartheta_l'}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \vartheta_l'}{\partial y^2}\right).$$

Важными аспектами выполненного анализа являются следующие факторы:

(i) В теории учитываются только линейные члены по морфологическим и динамическим возмущениям.

(ii) Учитывается, что уравнение стационарной теплопроводности имеет вид:

$$-\upsilon_s \frac{d\vartheta_{l0}}{dz} = D_l \frac{d^2\vartheta_{l0}}{dz^2}.$$

(iii) Учитываются граничные условия прилипания жидкости к межфазной границе:

$$u_{x0} = u_{y0} = u_{z0} = 0, \text{ при } z = 0.$$

(iv) Учитывается линейный вид возмущения скорости жидкости:

$$u_z = u_{z0} + \frac{\partial u_{z0}}{\partial z} Z' + u_z' = 0, \text{ при } z = 0 \text{ или } u_z' = U_z Z', \text{ при } z = 0.$$

Отметим, что подстановка в это уравнение возмущений, приводит к выражениям (12) и (14) при $z = 0$.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Dantzig J.A., Rappaz M. Solidification: 2nd Edition – Revised & Expanded. EPFL Press, Lausanne. 2017.
2. Fisher D., Kurz W. Fundamentals of solidification // Fundamentals of Solidification. 1998. P. 1–316.
3. Alexandrov D.V., Zubarev A.Y. Patterns in soft and biological matters // Philosophical Transactions of the Royal Society A. 2020. **378**. № 2171. P. 20200002.

4. Kurz W., Fisher D.J., Trivedi R. Progress in modelling solidification microstructures in metals and alloys: dendrites and cells from 1700 to 2000 // International Materials Reviews. 2019. **64**. № 6. P. 311–354.
5. 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. 2021. **66.** № 1. P. 30–76.
6. Galenko P.K., Toropova L.V., Alexandrov D.V., Phanikumar G., Assadi H., Reinartz M., Paul P., Fang Y., Lippmann S. Anomalous kinetics, patterns formation in recalescence, and final microstructure of rapidly solidified Al-rich Al-Ni alloys // Acta Materialia. 2022. **241**. P. 118384.
7. Alexandrov D.V., Galenko P.K. The shape of dendritic tips // Philosophical Transactions of the Royal Society A. 2020. **378**. № 2171. P. 20190243.
8. Александров Д.В., Дубовой Г.Ю., Малыгин А.П., Низовцева И.Г., Торопова Л.В. Затвердевание трехкомпонентных систем с нелинейной фазовой диаграммой // Расплавы. 2017. № 1. С. 3–17.
9. Александров Д.В., Низовцева И.Г., Александрова И.В., Иванов А.А., Стародумов И.О., Торопова Л.В., Гусакова О.В., Шепелевич В.Г. К теории направленного затвердевания при наличии области фазового превращения // Расплавы. 2020. № 5. С. 469–479.
10. Ivanov A.A., Alexandrova I.V., Alexandrov D.V. Towards the theory of phase transformations in metastable liquids. Analytical solutions and stability analysis // European Physical Journal Special Topics. 2020. **229**. P. 365–373.
11. Wang H., Liu F., Wang K., Zhai H. Oscillatory morphological stability for rapid directional solidification: effect of non-linear liquidus and solidus // Acta Materialia. 2011. **59**. № 14. P. 5859–5867.
12. Makoveeva E.V., Ivanov A.A., Alexandrova I.V., Alexandrov D.V. Directional crystallization with a mushy region. Part 1: linear analysis of dynamic stability // European Physical Journal Special Topics. 2023. **232**. P. 1119–1127.
13. Makoveeva E.V., Ivanov A.A., Alexandrova I.V., Alexandrov D.V. Directional crystallization with a mushy region. Part 2: nonlinear analysis of dynamic stability // European Physical Journal Special Topics. 2023. **232**. P. 1129–1139.
14. Mullins W.W., Sekerka R.F. Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy // Journal of Applied Physics. 1964. **35**. № 2. P. 444–451.
15. Sekerka R.F. A stability function for explicit evaluation of the Mullins-Sekerka interface stability criterion // Journal of Applied Physics. 1965. **36**. № 1. P. 264–268.
16. Sekerka R.F. Morphological stability // Journal of Crystal Growth. 1968. **3**. P. 71–81.
17. Cserti J., Tichy G. Stability of anisotropic liquid-solid interfaces // Acta Metallurgica. 1986. **34**. № 6. P. 1029–1034.
18. Wilson L.O. The effect of fluctuating growth rates on segregation in crystals grown from the melt // Journal of Crystal Growth. 1980. **48**. № 3. P. 435–458.
19. Wheeler A.A. The effect of a periodic growth rate on the morphological stability of a freezing binary alloy //Journal of Crystal Growth. 1984. **67**. № 1. P. 8–26.
20. Wollhöver K., Scheiwe M.W., Hartmann U., Körber C. On morphological stability of planar phase boundaries during unidirectional transient solidification of binary aqueous solutions // International Journal of Heat and Mass Transfer. 1985. **28.** № 5. P. 897–902.
21. Alexandrov D.V. Self-similar solidification: morphological stability of the regime // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2004. **47**. № 6–7. P. 1383–1389.
22. Laxmanan V. Morphological transitions in the rapid solidification regime: a re-examination of the fundamental validity of the absolute stability concept of Mullins and Sekerka //Acta Metallurgica. 1989. **37**. № 4. P. 1109–1119.
23. Alexandrov D.V., Ivanov A.O. Dynamic stability analysis of the solidification of binary melts in the presence of a mushy region: changeover of instability // Journal of Crystal Growth. 2000. **210.** № 4. P. 797–810.
24. Alexandrov D.V., Malygin A.P. Convective instability of directional crystallization in a forced flow: the role of brine channels in a mushy layer on nonlinear dynamics of binary systems // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2011. **54**. № . 5–6. P. 1144–1149.
25. Solomon T.H., Hartley R.R., Lee A.T. Aggregation and chimney formation during the solidification of ammonium chloride // Physical Review E. 1999. **60**. № 3. P. 3063.
26. Katz R.F., Worster M.G. Simulation of directional solidification, thermochemical convection, and chimney formation in a Hele-Shaw cell // Journal of Computational Physics. 2008. **227**. № 23. P. 9823–9840.
27. Delves R.T. Theory of stability of a solid-liquid interface during growth from stirred melts // Journal of Crystal Growth. 1968. **3.** P. 562–568.
28. Coriell S.R., Hurle D.T. J., Sekerka R.F. Interface stability during crystal growth: the effect of stirring // Journal of Crystal Growth. 1976. **32**. № 1. P. 1–7.

29. Favier J.J., Rouzaud A. Morphological stability of the solidification interface under convective conditions // Journal of Crystal Growth. 1983. **64**. № 2. P. 367–379.
30. Forth S.A., Wheeler A.A. Coupled convective and morphological instability in a simple model of the solidification of a binary alloy, including a shear flow // Journal of Fluid Mechanics. 1992. **236**. P. 61–94.
31. Chen Y.J., Davis S.H. Directional solidification of a binary alloy into a cellular convective flow: localized morphologies // Journal of Fluid Mechanics. 1999. **395**. P. 253–270.
32. Alexandrov D.V., Malygin A.P. Flow-induced morphological instability and solidification with the slurry and mushy layers in the presence of convection // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2012. **55**. № 11–12. P. 3196–3204.
33. Makoveeva E.V., Alexandrov D.V. Morphological stability analysis of a planar crystallization front with convection // European Physical Journal Special Topics. 2023. **232**. P. 1109–1117.
34. Kerr R.C., Woods A.W., Worster M.G., Huppert H.E. Solidification of an alloy cooled from above Part 1. Equilibrium growth // Journal of Fluid Mechanics. 1990. **216**. P. 323–342.
35. Turner J.S., Huppert H.E., Sparks R.S.J. Komatiites II: Experimental and theoretical investigations of post-emplacement cooling and crystallization // Journal of Petrology. 1986. **27**. № 2. P. 397–437.
36. Peppin S.S. L., Aussillous P., Huppert H.E., Worster M.G. Steady-state mushy layers: experiments and theory //Journal of Fluid Mechanics. 2007. **570.** P. 69–77.
37. Peppin S.S. L., Huppert H.E., Worster M.G. Steady-state solidification of aqueous ammonium chloride // Journal of Fluid Mechanics. 2008. **599**. P. 465–476.
38. Huguet L., Alboussiere T., Bergman M.I., Deguen R., Labrosse S., Lescœur G. Structure of a mushy layer under hypergravity with implications for Earth's inner core // Geophysical Journal International. 2016. **204**. № 3. P. 1729–1755.
39. Alexandrov D.V., Netreba A.V., Malygin A.P. Time-dependent crystallization in magma chambers and lava lakes cooled from above: the role of convection and kinetics on nonlinear dynamics of binary systems // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2012. **55**. № 4. P. 1189–1196.
40. Nizovtseva I.G., Alexandrov D.V. The effect of density changes on crystallization with a mushy layer // Philosophical Transactions of the Royal Society A. 2020. **378**. № 2171. P. 20190248.
41. Makoveeva E.V. Steady-state crystallization with a mushy layer: a test of theory with experiments // European Physical Journal Special Topics. 2023. P. 1165–1169.
42. Galenko P.K., Danilov D.A. Selection of the dynamically stable regime of rapid solidification front motion in an isothermal binary alloy // Journal of Crystal Growth.– 2000. **216**. № 1–4. P. 512–526.
43. Alexandrov D.V., Mansurov V.V. Dynamic stability of a solidification process of a binary melt in the presence of a broad quasiequilibrium mushy region //Scripta Materialia. 1996. **35**. № 7. P. 787–790.
44. Buevich Y.A., Iskakova L.Y., Mansurov V.V. Design of processes involving directional solidification with an equilibrium two-phase zone // Teplofizika Vysokikh Temperatur. 1991. **29**. № 2. P. 286–293.
45. Alexandrov D., Buyevich Y., Mansurov V., Vabischevich P., Churbanov A. Directional solidification of binary melts in the presence of a mushy region // Numerical Methods in Engineering'96 (Paris, 9–13 September 1996). 1996. C. 697–706.
46. Чернов А.А. Об одной модели затвердевания магмы в процессе эксплозивного вулканического извержения // Прикладная механика и техническая физика. 2003. **44.** № 5. С. 89–90.
47. Долбак А.Е., Жачук Р.А., Ольшанецкий Б.З. Диффузия Cu по чистой поверхности Si (111) // Физика и техника полупроводников. 2001. **35**. № 9. С. 1063–1066.
48. Pelcé P. Dynamics of Curved Fronts. Academic Press, Boston, MA. 1988.
49. Bouissou P., Pelcé P. Effect of a forced flow on dendritic growth // Physical Review A. 1989. **40**. № 11. P. 6673.
50. Alexandrov D.V., Galenko P.K. Dendritic growth with the six-fold symmetry: theoretical predictions and experimental verification // Journal of Physics and Chemistry of Solids. 2017. **108**. P. 98–103.
51. Kessler D.A., Koplik J., Levine H. Pattern selection in fingered growth phenomena // Advances in Physics. 1988. **37**. № 3. P. 255–339.
52. Торопова Л.В., Александров Д.В., Галенко П.К. К вопросу об устойчивом росте анизотропного дендрита при конвективном теплопереносе в жидкой фазе у поверхности дендрита // Расплавы. 2018. № 3. С. 320–329.
53. Feltham D.L., Worster M.G. Flow-induced morphological instability of a mushy layer // Journal of Fluid Mechanics. 1999. **391.** P. 337–357.
54. Feltham D.L., Worster M.G., Wettlaufer J.S. The influence of ocean flow on newly forming sea ice //Journal of Geophysical Research: Oceans. 2002. **107**.– № C2. P. 1119.
55. Alexandrov D.V., Malygin A.P. Convective instability of solidification with a phase transition zone // Journal of Experimental and Theoretical Physics. 2011. **112**. P. 596–601.

LINEAR STABILITY ANALYSIS OF A SOLIDIFICATION PROCESS WITH CONVECTION IN A BOUNDED REGION OF SPACE

Makoveeva E.V.[1], Koroznikova I.E.[1], Glebova A.E.[1], Ivanov A.A.[1], Alexandrov D.V.[1]

[1]*Ural Federal University named after the First President of Russia B.N. Yeltsin, Yekaterinburg, Russia*

The morphological/dynamic instability of crystallization process in a bounded region in the presence of intense convection in liquid is studied. The paper considers a linear theory of morphological instability with a flat solid-liquid interface on the example of molten metal and magma. The mathematical model includes heat transfer equations and convective type boundary conditions at the interface. The equations for perturbations of the temperature field and interfacial boundary are found, allowing to obtain the dispersion relation. Its analysis has shown the existence of morphological instability of the flat interfacial boundary for a wide range of wavenumbers. Dynamic perturbations (perturbations of the quasi-stationary crystallization velocity) were also analyzed and two solutions for the perturbation frequency were obtained. One of them is stable and the other one is unstable. The system selects one of them depending on the action of convection. The result of morphological and dynamic instability is the appearance of a two-phase region in front of a flat solid-liquid interface. Therefore, the paper also considers the dynamic instability of stationary crystallization with a two-phase region replaced by a discontinuity surface. In this case, the dynamic instability was also found for a wide range of crystallization velocities.

Keywords: directional crystallization, convection, linear stability analysis, analytical solutions

REFERENCES

1. Dantzig J.A., Rappaz M. Solidification: 2nd Edition – Revised & Expanded. EPFL Press, Lausanne. 2017.
2. Fisher D., Kurz W. Fundamentals of solidification // Fundamentals of Solidification. 1998. P. 1–316.
3. Alexandrov D.V., Zubarev A.Y. Patterns in soft and biological matters // Philosophical Transactions of the Royal Society A. 2020. **378**. № 2171. P. 20200002.
4. Kurz W., Fisher D.J., Trivedi R. Progress in modelling solidification microstructures in metals and alloys: dendrites and cells from 1700 to 2000 // International Materials Reviews. 2019. **64**. № 6. P. 311–354.
5. 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. 2021. **66.** № 1. P. 30–76.
6. Galenko P.K., Toropova L.V., Alexandrov D.V., Phanikumar G., Assadi H., Reinartz M., Paul P., Fang Y., Lippmann S. Anomalous kinetics, patterns formation in recalescence, and final microstructure of rapidly solidified Al-rich Al-Ni alloys // Acta Materialia. 2022. **241**. P. 118384.
7. Alexandrov D.V., Galenko P.K. The shape of dendritic tips // Philosophical Transactions of the Royal Society A. 2020. **378**. № 2171. P. 20190243.
8. Alexandrov D.V., Dubovoi G. Yu., Malygin A.P., Nizovtseva I.G., Toropova L.V. Solidification of ternary systems with a nonlinear phase diagram // Russian Metallurgy (Metally). 2017. **2017**. P. 127–135.
9. Alexandrov D.V., Nizovtseva I.G., Alexandrova I.V., Ivanov A.A., Starodumov I.O., Toropova L.V., Gusakova O.V., Shepelevich V.G. On the Theory of Directional Solidification in the Presence of a Mushy Zone // Russian Metallurgy (Metally). 2021. **2021**. P. 170–175.
10. Ivanov A.A., Alexandrova I.V., Alexandrov D.V. Towards the theory of phase transformations in metastable liquids. Analytical solutions and stability analysis // European Physical Journal Special Topics. 2020. **229**. P. 365–373.

11. Wang H., Liu F., Wang K., Zhai H. Oscillatory morphological stability for rapid directional solidification: effect of non-linear liquidus and solidus // Acta Materialia. 2011. **59**. № 14. P. 5859–5867.
12. Makoveeva E.V., Ivanov A.A., Alexandrova I.V., Alexandrov D.V. Directional crystallization with a mushy region. Part 1: linear analysis of dynamic stability // European Physical Journal Special Topics. 2023. **232**. P. 1119–1127.
13. Makoveeva E.V., Ivanov A.A., Alexandrova I.V., Alexandrov D.V. Directional crystallization with a mushy region. Part 2: nonlinear analysis of dynamic stability // European Physical Journal Special Topics. 2023. **232**. P. 1129–1139.
14. Mullins W.W., Sekerka R.F. Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy // Journal of Applied Physics. 1964. **35**. № 2. P. 444–451.
15. Sekerka R.F. A stability function for explicit evaluation of the Mullins-Sekerka interface stability criterion // Journal of Applied Physics. 1965. **36**. № 1. P. 264–268.
16. Sekerka R.F. Morphological stability // Journal of Crystal Growth. 1968. **3**. P. 71–81.
17. Cserti J., Tichy G. Stability of anisotropic liquid-solid interfaces // Acta Metallurgica. 1986. **34**. № 6. P. 1029–1034.
18. Wilson L.O. The effect of fluctuating growth rates on segregation in crystals grown from the melt // Journal of Crystal Growth. 1980. **48**. № 3. P. 435–458.
19. Wheeler A.A. The effect of a periodic growth rate on the morphological stability of a freezing binary alloy //Journal of Crystal Growth. 1984. **67**. № 1. P. 8–26.
20. Wollhöver K., Scheiwe M.W., Hartmann U., Körber C. On morphological stability of planar phase boundaries during unidirectional transient solidification of binary aqueous solutions // International Journal of Heat and Mass Transfer. 1985. **28.** № 5. P. 897–902.
21. Alexandrov D.V. Self-similar solidification: morphological stability of the regime // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2004. **47**. № 6–7. P. 1383–1389.
22. Laxmanan V. Morphological transitions in the rapid solidification regime: a re-examination of the fundamental validity of the absolute stability concept of Mullins and Sekerka //Acta Metallurgica. 1989. **37**. № 4. P. 1109–1119.
23. Alexandrov D.V., Ivanov A.O. Dynamic stability analysis of the solidification of binary melts in the presence of a mushy region: changeover of instability // Journal of Crystal Growth. 2000. **210.** № 4. P. 797–810.
24. Alexandrov D.V., Malygin A.P. Convective instability of directional crystallization in a forced flow: the role of brine channels in a mushy layer on nonlinear dynamics of binary systems // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2011. **54**. № . 5–6. P. 1144–1149.
25. Solomon T.H., Hartley R.R., Lee A.T. Aggregation and chimney formation during the solidification of ammonium chloride // Physical Review E. 1999. **60**. № 3. P. 3063.
26. Katz R.F., Worster M.G. Simulation of directional solidification, thermochemical convection, and chimney formation in a Hele-Shaw cell // Journal of Computational Physics. 2008. **227**. № 23. P. 9823–9840.
27. Delves R.T. Theory of stability of a solid-liquid interface during growth from stirred melts // Journal of Crystal Growth. 1968. **3.** P. 562–568.
28. Coriell S.R., Hurle D.T. J., Sekerka R.F. Interface stability during crystal growth: the effect of stirring // Journal of Crystal Growth. 1976. **32**. № 1. P. 1–7.
29. Favier J.J., Rouzaud A. Morphological stability of the solidification interface under convective conditions // Journal of Crystal Growth. 1983. **64**. № 2. P. 367–379.
30. Forth S.A., Wheeler A.A. Coupled convective and morphological instability in a simple model of the solidification of a binary alloy, including a shear flow // Journal of Fluid Mechanics. 1992. **236**. P. 61–94.
31. Chen Y.J., Davis S.H. Directional solidification of a binary alloy into a cellular convective flow: localized morphologies // Journal of Fluid Mechanics. 1999. **395**. P. 253–270.
32. Alexandrov D.V., Malygin A.P. Flow-induced morphological instability and solidification with the slurry and mushy layers in the presence of convection // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2012. **55**. № 11–12. P. 3196–3204.
33. Makoveeva E.V., Alexandrov D.V. Morphological stability analysis of a planar crystallization front with convection // European Physical Journal Special Topics. 2023. **232**. P. 1109–1117.
34. Kerr R.C., Woods A.W., Worster M.G., Huppert H.E. Solidification of an alloy cooled from above Part 1. Equilibrium growth // Journal of Fluid Mechanics. 1990. **216**. P. 323–342.
35. Turner J.S., Huppert H.E., Sparks R.S.J. Komatiites II: Experimental and theoretical investigations of post-emplacement cooling and crystallization // Journal of Petrology. 1986. **27**. № 2. P. 397–437.
36. Peppin S.S. L., Aussillous P., Huppert H.E., Worster M.G. Steady-state mushy layers: experiments and theory //Journal of Fluid Mechanics. 2007. **570.** P. 69–77.

37. Peppin S.S. L., Huppert H.E., Worster M.G. Steady-state solidification of aqueous ammonium chloride // Journal of Fluid Mechanics. 2008. **599**. P. 465–476.
38. Huguet L., Alboussiere T., Bergman M.I., Deguen R., Labrosse S., Lescœur G. Structure of a mushy layer under hypergravity with implications for Earth's inner core // Geophysical Journal International. 2016. **204**. № 3. P. 1729–1755.
39. Alexandrov D.V., Netreba A.V., Malygin A.P. Time-dependent crystallization in magma chambers and lava lakes cooled from above: the role of convection and kinetics on nonlinear dynamics of binary systems // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2012. **55**. № 4. P. 1189–1196.
40. Nizovtseva I.G., Alexandrov D.V. The effect of density changes on crystallization with a mushy layer // Philosophical Transactions of the Royal Society A. 2020. **378**. № 2171. P. 20190248.
41. Makoveeva E.V. Steady-state crystallization with a mushy layer: a test of theory with experiments // The European Physical Journal Special Topics. 2023. P. 1165–1169.
42. Galenko P.K., Danilov D.A. Selection of the dynamically stable regime of rapid solidification front motion in an isothermal binary alloy // Journal of Crystal Growth.– 2000. **216**. № 1–4. P. 512–526.
43. Alexandrov D.V., Mansurov V.V. Dynamic stability of a solidification process of a binary melt in the presence of a broad quasiequilibrium mushy region //Scripta Materialia. 1996. **35**. № 7. P. 787–790.
44. Buevich Y.A., Iskakova L.Y., Mansurov V.V. Design of processes involving directional solidification with an equilibrium two-phase zone // Teplofizika Vysokikh Temperatur. 1991. **29**. № 2. P. 286–293.
45. Alexandrov D., Buyevich Y., Mansurov V., Vabischevich P., Churbanov A. Directional solidification of binary melts in the presence of a mushy region // Numerical Methods in Engineering'96 (Paris, 9–13 September 1996). 1996. C. 697–706.
46. Chernov A.A. A model of magma solidification during explosive volcanic eruptions // Journal of Applied Mechanics and Technical Physics. 2003. **44**. P. 667–675.
47. Dolbak A.E., Zhachuk R.A., Olshanetsky B.Z. Diffusion of Cu over a clean Si (111) surface // Semiconductors. 2001. **35**. P. 1018–1021.
48. Pelcé P. Dynamics of Curved Fronts. Academic Press, Boston, MA. 1988.
49. Bouissou P., Pelcé P. Effect of a forced flow on dendritic growth // Physical Review A. 1989. **40**. № 11. P. 6673.
50. Alexandrov D.V., Galenko P.K. Dendritic growth with the six-fold symmetry: theoretical predictions and experimental verification // Journal of Physics and Chemistry of Solids. 2017. **108**. P. 98–103.
51. Kessler D.A., Koplik J., Levine H. Pattern selection in fingered growth phenomena // Advances in Physics. 1988. **37**. № 3. P. 255–339.
52. Toropova L.V., Alexandrov D.V., Galenko P.K. K voprosu ob ustoychivosti rosta anizotropnogo dendrita pri konvektivnom teploperenose v zhidkoy faze na poverkhnosti dendrita [On the question of stable growth of an anisotropic dendrite in the case of convective heat transfer in the liquid phase at the surface of dendrite] // Rasplavy. 2018. № 3. P. 320–329. [In Russian]
53. Feltham D.L., Worster M.G. Flow-induced morphological instability of a mushy layer // Journal of Fluid Mechanics. 1999. **391.** C. 337–357.
54. Feltham D.L., Worster M.G., Wettlaufer J.S. The influence of ocean flow on newly forming sea ice //Journal of Geophysical Research: Oceans. 2002. **107**. № C2. P. 1119.
55. Alexandrov D.V., Malygin A.P. Convective instability of solidification with a phase transition zone // Journal of Experimental and Theoretical Physics. 2011. **112**. P. 596–601.