

特约专栏

空间模拟条件下三元共晶合金凝固研究

解文军, 魏炳波

(西北工业大学应用物理系, 陕西 西安 710072)

摘要: 三元共晶凝固过程涉及三个固相在同一液相中的竞争形核和协作生长, 可以形成丰富多样的凝固组织, 对发展原位复合材料制备技术和研究自发模式形成现象都具有重要的意义。空间环境中的微重力和无容器效应消除了重力引起的对流、沉降以及器壁引起的异质形核, 为深入研究非平衡快速凝固规律提供了理想的实验条件。由于空间实验机会十分难得, 人们发展了自由落体、悬浮、抛物飞行、探空火箭等多种空间环境的地面模拟方法, 部分的或一定程度的实现空间的微重力和无容器效应。对国内外采用浸浮净化、落管、超声悬浮等地面模拟方法开展的三元共晶合金凝固研究工作进行了综述, 并对未来发展趋势进行了展望。

关键词: 三元共晶; 空间模拟条件; 微重力; 无容器; 深过冷; 凝固

中图分类号: V524 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2017)12-0873-07

Solidification of Ternary Eutectic Alloys under Simulated Space Conditions

XIE Wenjun, WEI Bingbo

(Department of Applied Physics, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

Abstract: The solidification of ternary eutectic alloys involves competitive nucleation and cooperative growth of three solid phases in the same mother liquid phase, which generates plenty of microstructural morphologies. This is of importance for the methodological exploration of in situ composite material preparation as well as theoretical study of pattern formation phenomena. The microgravity effect and containerless state in space environment eliminate the convection and buoyancy induced by gravity, and avoid the heterogeneous nucleation originated from container walls, providing an ideal experimental condition for rapid solidification of metastable melts. Because of the extremely rare opportunity for space experiment, various ground based approaches (*e. g.* free fall, levitation, parabolic flight, and sounding rocket) are developed to achieve the microgravity and containerless effects to a certain degree. This paper reviews the recent progress of ternary eutectic solidification researches that are performed with ground simulation methods such as glass fluxing, drop tube, and acoustic levitation. The prospective developing trends are also discussed.

Key words: ternary eutectics; simulated space conditions; microgravity; containerless state; undercooling; solidification

1 前言

大多数工业合金材料都是多元和复相材料。理解多元复相合金的凝固组织形成机制, 找到有效的凝固组织控制方法, 具有重要的工程和应用价值^[1]。共晶合金是一种重要的复相合金类型, 其熔化温度低于每一组元的熔点, 且流动性好, 具有良好的铸造、成形和焊接性能。

共晶合金凝固过程中形成两个或两个以上固相的共生结构, 是制备原位复合材料的有效途径。作为一种具有自发模式形成和自组织特征的自然现象, 共晶生长也引起了广泛的理论研究兴趣^[2,3]。

三元共晶具有重要的应用。例如, Sn-Ag-Cu 是一种重要的无铅电子焊料^[4], Ag-Pb-Te 具有良好的热电性能^[5]。三元共晶合金体系也是人们寻找大块非晶金属的主要参考, 很多具有较强玻璃形成能力的合金都位于三元共晶成分附近, 如 Zr-Cu-Al、Zr-Ni-Al、Ni-Nb-Sn 等^[6,7]。在无机非金属和有机材料领域, 三元共晶也具有重要的功能, 如 MA-PA-SA 可以作为相变材料具有较好的储能特性^[8], Al₂O₃-Y₃Al₅O₁₂-ZrO₂ 作为一种共晶陶瓷

收稿日期: 2017-05-24

基金项目: 国家自然科学基金项目(51371148); 中国载人空间站工程项目(TGJZ800-2-RW024)

第一作者: 解文军, 男, 1974年生, 教授, Email: wjxie@nwpu.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.2017.12.01

具有良好的力学性能^[9]。

自 Jackson 和 Hunt^[10]的开创性研究以来,二元共晶生长已经取得了丰富的研究成果,人们对二元共晶的凝固过程也有了比较全面和深入的认识。二元共晶组织主要有层片状、棒状和迷宫状。二元共晶生长的物理过程主要涉及凝固界面前沿液相中溶质原子的横向耦合扩散和液固界面在不同热力学和动力学条件下的稳定性^[11]。三元共晶生长涉及三个固相在同一液相中的竞争形核和协同生长,协作方式除了三个固相的共同生长(α - β - γ),还有三个固相之间的两两协作(α - β 、 β - γ 、 γ - α),三相之间的排列次序和组合结构也是多种多样^[12],因此三元共晶的组织形态更为丰富。再加上三个固相在形核速率、体积分数、生长方式和生长速度等方面的差异,使得三元共晶生长过程变得更加复杂。相对于二元共晶而言,人们对三元共晶的凝固过程只有较为粗浅的认识。

三元共晶生长过程中,生长前沿液相中原先均匀分布的三种组元原子在液固相变过程中重新分布和排列。这一过程是通过溶质的横向扩散和热量的纵向传输实现的,在地面条件下会受到重力引起的对流的影响。如果共晶相和液相之间存在明显的密度差异,在形核阶段和生长初期还会发生由于密度差而引起的浮升或沉降。因此,地面重力因素又增加了研究三元共晶生长的难度。空间微重力环境消除了重力引起的对流和沉降效应,简化了凝固过程的动力学条件,有助于人们发现和认识在地面上被重力掩盖的现象。另一方面,空间无容器效应可以消除器壁引起的污染和异质晶核,使合金熔体在凝固前获得深过冷,为研究亚稳液相中的新相形核和相选择、以及远离平衡条件下的快速晶体生长和组织演化提供了理想的实验机会。

空间环境特征主要包括微重力、无容器、超高真空、空间辐射、原子氧等。对合金凝固过程而言,最主要的影响因素是微重力、无容器和超高真空。由于空间实验机会十分难得,人们发展了多种空间环境的地面模拟方法,部分的或一定程度的实现空间的微重力和无容器效应。如自由落体(落管、落塔、落井)、悬浮(电磁悬浮、静电悬浮、超声悬浮、气动悬浮)、探空火箭、抛物飞机等。本文主要对国内外采用空间模拟技术开展的三元共晶合金凝固研究进行综述,并对未来的发展进行展望。

2 三元共晶凝固原理

2.1 二元共晶生长理论

三元共晶的凝固机理可参照二元共晶理论进行一般性讨论。二元共晶生长的基本特征是协同生长的两相之间可以进行溶质原子的高效交换,这是通过两相之间的

侧向短程扩散实现的,即两个协同生长的固相沿凝固界面前沿排列成交替的夹层结构(层片状共晶),或其中一相以纤维状阵列镶嵌于另一相的基体中(棒状共晶)。显然,为了达到高效的溶质原子互换,两相之间的间距越小,则原子互扩散越容易进行。但另一方面,两相间距的缩小将会增大界面面积,从而增加体系的总界面能,不利于热力学稳定性。从凝固动力学角度来看,两相间距的缩小会降低凝固界面前沿液相中的溶质浓度,从而减小生长所需的成分过冷,但同时也会促进 Gibbs-Thomson 效应,增加了对曲率过冷的要求。这两方面因素的共同作用,使二元共晶生长最终选择一个合适的相间距。理论和实验均表明,二元共晶层片间距 λ 与界面过冷度 ΔT 或生长速度 V 具有以下关系:即 $\lambda^2 V = \text{常数}$,或 $\lambda \Delta T = \text{常数}$ ^[10]。

二元共晶的生长形态主要取决于两方面因素。一是两个固相的体积分数:如果两相的体积分数大致相当,一般形成层片状共晶;如果两相的体积分数相差较大,则体积分数小的一相倾向于形成纤维状,而另一相形成基体相。其基本原理仍是降低界面能。第二个因素是两个固相的晶体生长特征:如果两相都是以非小面相方式生长,则形成规则排列的层片或棒状共晶;如果有一相为小面相,由于小面相具有自身的优先生长方向,一般会形成不规则排列的层片或棒状结构。

2.2 三元共晶体系的凝固特征

真实的三元共晶体系一般都比较复杂,相图中除了三元共晶区域,还存在包晶、包共晶、金属间化合物等区域。为了简化对三元共晶体系凝固的描述,McCartney 等^[13]采用简单三元共晶相图,并假定三个共晶相都易于形核且均以非小面相形式生长,可以将三元共晶凝固组织特征按合金成分划分为5个区域,如图1所示。其中区域1为单相生长区,区域2为两相共晶区,区域3为共晶沟区,区域4为三相共晶区,区域5为远离共晶沟区。区域2对应的凝固组织为二相层片共晶或棒状共晶,如图2a所示。在区域3,合金以二相共晶胞或二相枝晶方式生长,同时伴随三元共晶薄层的包裹,其生长界面特征如图2b所示。区域4对应的是三相共晶组织,如图2c所示。区域5比较复杂,首先生成单相胞晶或枝晶,接着出现二相共晶或三相共晶或既出现二相共晶又出现三相共晶。依据所在的区域的不同,其生长界面特征分别如图2d、2e和2f所示。

实际的三元共晶合金凝固没有这么简单,或多或少总存在三相体积分数不对称、领先形核相、小面生长相、宏观偏析等问题。所以,即便是严格位于三元共晶点成分的合金,其凝固组织一般也不完全是单纯的三相共晶。

除了三相共晶外，还可能出现图 2 中的其余凝固组织。

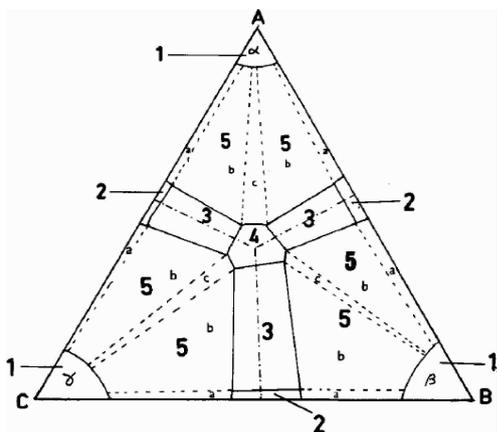


图 1 简单三元共晶体系中不同凝固组织区域的划分^[13]
Fig. 1 Various microstructural regions in a simple ternary eutectic system^[13]

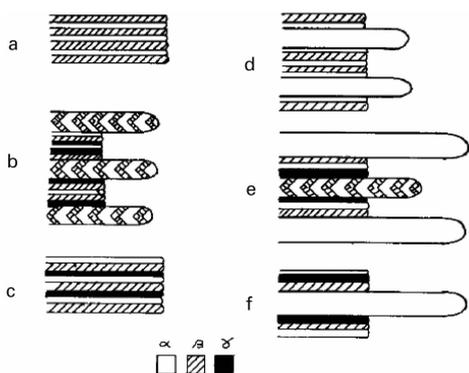


图 2 三元共晶体系的生长界面示意图^[13]
Fig. 2 Schematic growth interfaces in a ternary eutectic system^[13]

2.3 三元共晶的生长模式

从共晶相的晶体生长特征分析，三元共晶中可能出现零到三个小面相，即可能形成 4 种类型的组合^[14]。已经发现的三元共晶中，有以下 3 种类型：①“非小面-非小面-小面”类型，如 Cd-Pb-Sn 三元共晶^[15]，倾向于形成三相层片结构；②“非小面-小面-小面”类型，如 Bi-Cd-Sn^[16]、Bi-Cd-Pb^[17]、Bi-In-Sn (350 K)^[18]，倾向于形成双二元共晶结构；③“非小面-非小面-非小面”类型，如 Bi-In-Sn (332 K)^[14]，倾向于形成三相纤维结构或三相层片结构。目前还没有发现三相全部是小面相生长的三元共晶。

二元共晶的结构按照体积分数的差异，一般形成层片状和棒状两种类型，在生长过程中有利溶质的扩散距离最短。依此原理分析三元共晶几何结构，有以下几种可能性^[14]：①三相层片；②二相层片+一相纤维；③一相层片+两相纤维；④两相纤维+一相基体；⑤三相纤

维。图 3 给出了一相层片+两相纤维构成的共晶组织示意图。

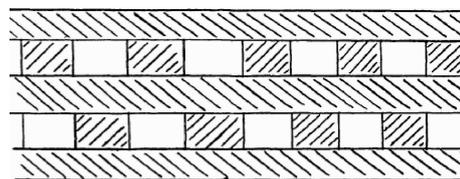


图 3 一相层片和两相纤维构成的一种三元共晶体结构示意图^[14]
Fig. 3 Schematic diagram of transverse section of ternary eutectic microstructure showing one lamellar phase and two fibrous phases^[14]

从空间排列顺序的角度分析，二元共晶只有“ $\alpha\beta\alpha\beta\cdots$ ”这一种排列方式，三元共晶增加了一个 γ 相后，原理上有无数种排列方式，最简单的几种如：“ $\alpha\beta\gamma\alpha\beta\gamma\cdots$ ”，“ $\alpha\beta\gamma\alpha\beta\gamma\cdots$ ”，“ $\alpha\beta\alpha\beta\gamma\alpha\beta\gamma\cdots$ ”^[12]。再加上体积分数因素、小面相/非小面相生长因素、领先形核相因素、界面能因素以及生长速度因素等，可以说三元共晶的生长模式是千变万化、丰富多彩。

Choudhury^[19]采用相场方法模拟研究了体积分数和液固界面能对三元共晶组织形态的作用，发现三个固相体积分数的不对称和三个相界面能的不对称是决定三相毗邻和配位关系的主要因素。图 4 是相场模拟的两个结果。图 4a 中三个固相的体积分数相等，但红色相的液固界面能低于另外两相。图 4b 中三个相的液固界面能相等，但蓝色相的体积分数大于另外两相。这两种条件下都形成了类似于图 3 所示的三元共晶组织形态。

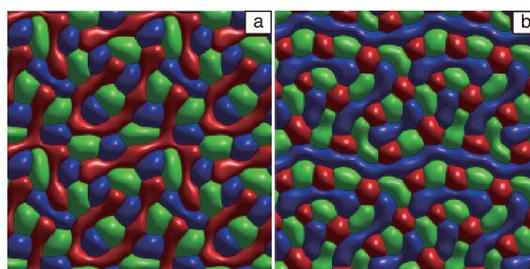


图 4 三元共晶生长模式的相场模拟^[19]
Fig. 4 Phase-field simulation of ternary eutectic growth pattern^[19]

液固界面能的作用有两方面^[19]：一是按照四相接触点附近的界面曲率修正单个固相的形状，二是由于 Gibbs-Thomson 效应使固相成分发生改变，从而与固相分数实现了作用耦合。对于较小的凝固速度和较粗大的凝固组织，第二种作用不明显。通过调节三相的体积分数和固液界面能相对大小，可以实现对真实三元共晶组织形貌的再现，如图 5 所示。其中图 5a 中的白色、灰色和

黑色相分别是 Ag_2Al 、 Al_2Cu 和 (Al) 相。

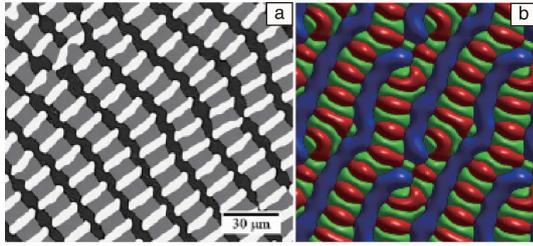


图 5 Al-Ag-Cu 三元共晶定向凝固组织和相场模拟结果^[19]
Fig. 5 Microstructure of directionally solidified Al-Ag-Cu ternary eutectic alloy and phase-field simulated result^[19]

3 空间模拟条件下三元共晶凝固

3.1 深过冷条件下三元共晶凝固

采用熔融玻璃净化法, Wei 等^[20]研究了 Ag-Cu-Ge 三元共晶的深过冷和快速凝固。 $\text{Ag}_{38.5}\text{Cu}_{33.4}\text{Ge}_{28.1}$ 三元共晶合金熔体获得了最大 185 K ($0.228T_E$) 的过冷度。三元共晶组织由 (Ag) 固溶体相、(Ge) 固溶体相和 $\eta(\text{Cu}_3\text{Ge})$ 金属间化合物相组成, 如图 6 所示^[21]。(Ge) 相是凝固过程中的初生相, (Ag) 相和 η 相趋向于形成层片状结构。实验发现, 随着过冷度的增大, 凝固组织

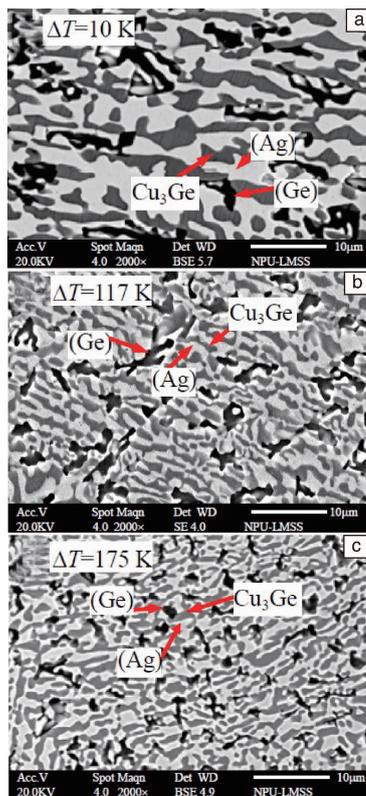


图 6 Ag-Cu-Ge 三元共晶在不同过冷度下的凝固组织形态^[21]
Fig. 6 Microstructure morphologies of Ag-Cu-Ge ternary eutectic alloy solidified at various undercoolings^[21]

发生了三方面变化。其一是三元共晶组织细化, 例如 (Ag) 相和 η 相的平均间距随过冷度的变化满足关系 $\lambda\Delta T^{1.69} = \text{常数}$, 尽管这一关系不同于二元共晶的函数关系 $\lambda\Delta T = \text{常数}$, 其随过冷度变化的趋势是一致的。其二是发生了从“三个共晶相合作生长”到“(Ge) 相优先于 (Ag) 相和 η 相生长”的生长模式转变, 在不同过冷度下, (Ag) 相和 η 相始终以层片方式协作生长, 而 (Ge) 相随过冷度增大倾向于独立生长。其三是随着过冷度的增大, (Ge) 相的宏观偏析受到抑制。此外, 对三个共晶相的成分分析发现, 随着过冷度增大, 三个共晶相的固溶度均发生一定程度的扩展。

Ruan 等^[22,23]研究了 Ag-Cu-Sb 三元共晶合金在熔融玻璃净化条件下的快速凝固。 $\text{Ag}_{42.4}\text{Cu}_{21.6}\text{Sb}_{36}$ 三元共晶合金获得的过冷度最大达到 114 K ($0.16T_E$)。凝固过程中的相组成为 $\varepsilon(\text{Ag}_3\text{Sb})$ 、 $\theta(\text{Cu}_2\text{Sb})$ 和 (Sb) 相, 其中初生相为 θ 相。凝固组织中包含了以下几种生长模式: 领先生长的板条状 θ 相、二相共晶 ($\varepsilon+\theta$)、二相共晶 ($\varepsilon+\text{Sb}$)、以及三元共晶 ($\varepsilon+\theta+\text{Sb}$)。三元共晶组织中, (Sb) 相以小面方式独立生长, 而 ε 和 θ 相合作生长, 如图 7 所示。实验发现, 随着过冷度的增大, 初生相和两种二相共晶的体积分数逐步减小, 而三元共晶的体积分数逐步增大,

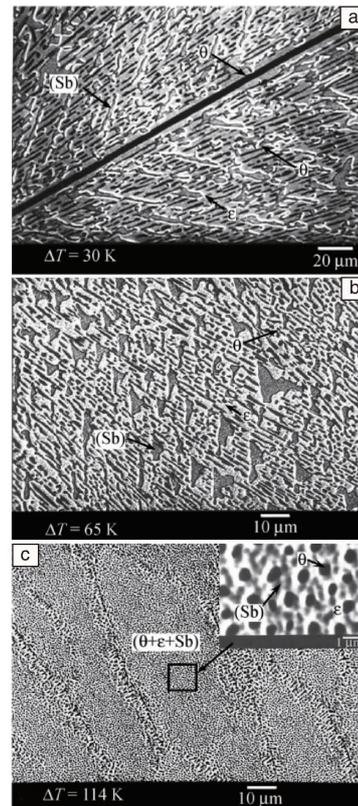


图 7 三元共晶在不同过冷度下的凝固组织形态^[22]
Fig. 7 Microstructure morphologies of Ag-Cu-Sb ternary eutectic alloy solidified at various undercoolings^[22]

并且三元共晶由规则层片向不规则共晶转变。当过冷度超过 102 K 时，不规则三元共晶成为唯一的微观组织。实验还发现，随着过冷度的增大，初生 θ 相的尺寸也在逐渐减小。

Ruan 等^[24]还研究了 Al-Cu-Si 三元共晶合金的深过冷和快速凝固，对三元共晶凝固过程中的相组成、凝固组织特征、及其随过冷度变化的演变规律进行了深入分析。Al_{80.4}Cu_{13.6}Si₆三元共晶合金在熔融玻璃净化实验中获得的最大过冷度为 147 K (0.18T_E)。三元共晶的相组成为 α (Al) 固溶体、(Si) 固溶体和 θ (Al₂Cu) 金属间化合物。凝固组织中包含以下几种生长模式：即以枝晶方式生长的初生 α (Al)、以小面方式生长的初生 (Si)、二相共晶 (Al+ θ)、以及三元共晶 (Al+Si+ θ)。三元共晶组织中，(Si) 以小面相方式独立生长，而 α (Al) 和 θ 相以非小面相方式合作生长，形成层片状结构。实验发现，随着过冷度的增大，初生相发生了改变。小过冷条件下， α (Al) 为领先形核相，以枝晶方式生长。当过冷度大于 73 K 时，(Si) 相优先形核并以小面相方式生长为块状。随着过冷度增大，初生 (Al) 枝晶的体积分数逐渐减小，块状初生 (Si) 的体积分数逐渐增加。

3.2 自由落体条件下三元共晶凝固

采用 3 m 落管，Wang 等^[25]使 Ag_{38.5}Cu_{33.4}Ge_{28.1}三元共晶合金在自由落体状态下实现了直径 100 ~ 900 μm 微小液滴的快速凝固。三元共晶组织由 (Ag) 固溶体相、 η (Cu₃Ge) 金属间化合物相和 (Ge) 固溶体相组成。随着液滴直径的减小，过冷度和冷速迅速增大，(Ge) 相发生了从“板条状”到“颗粒状”的组织形态转变，如图 8 所示。低重力条件使得 (Ge) 相呈现均匀分布。在尺寸较小的液滴中，形成了一种不规则共晶组织，其晶粒呈现球形，如图 8c 所示。当过冷度超过一个临界值得时候，这种不规则共晶既可以在二元共晶合金中形成也可以在三元共晶合金中形成。共晶组织形貌发生“层片共晶-不规则共晶”转变的原因是高冷速和深过冷。共晶胞的球形辐射状生长表明，自由落体条件下液相中的温度场和浓度场呈现良好的几何对称性。

Dai 等^[26]在自由落体条件下，实现了直径为 100 ~ 950 μm 的 Al_{74.6}Cu_{17.2}Mg_{8.2}三元共晶合金熔体液滴的快速凝固。三元共晶的相组成为 α (Al) 固溶体、 θ (Al₂Cu) 金属间化合物和 S(Al₂CuMg) 金属间化合物。凝固组织中包含两种生长模式：(Al+ θ) 二相共晶和 (Al+ θ +S) 三元共晶，其特点是二相共晶以孤岛形式镶嵌在三元共晶的基体中。随着液滴直径的减小，(Al+ θ) 二相共晶的体积分数逐渐减少，而 (Al+ θ +S) 三元共晶的体积分数逐渐增大。当液滴直径小于 200 μm 时，(Al+ θ) 二相共晶消失，

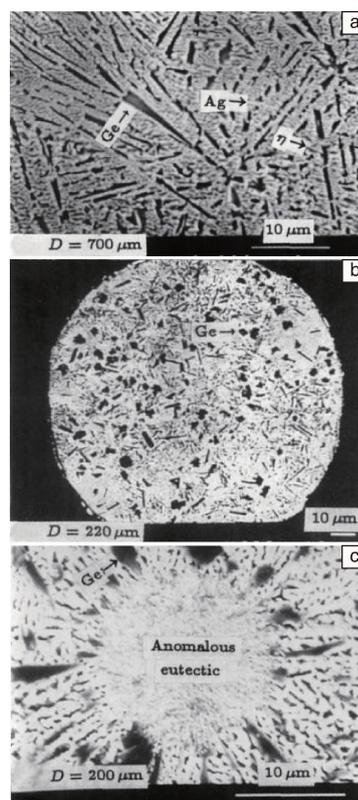


图 8 落管条件下不同尺寸 Ag-Cu-Ge 三元共晶合金液滴的凝固组织^[25]
Fig. 8 Microstructures of Ag-Cu-Ge ternary eutectic alloy droplets with different diameters solidified in a drop tube^[25]

凝固组织全部为 (Al+ θ +S) 三元共晶。这种情况下，凝固组织中一般会形成若干个辐射状生长的球形三元共晶胞。而对于实验中直径为 100 μm 的最小液滴，整个液滴以辐射状方式凝固并形成仅有的一个球形三元共晶胞，如图 9a 所示，其形核中心为 α (Al) 相。图 9b 显示，三元共晶胞组织中三个共晶相以颗粒状方式合作生长，并且排列成一种十分有利于溶质原子相互交换的空间结构。

此外，Toledo 等^[27]也采用 3 m 落管方法对 Bi_{32.5}In₅₁Sn_{16.5}三元共晶合金的无容器凝固过程进行了研究，实现了直径 200 ~ 400 μm 液滴的凝固，一致获得了不规则三元共晶组织。而在常规重力条件下，凝固组织中既包含规则层片组织也包含不规则共晶。

3.3 无容器条件下三元共晶凝固

采用声悬浮和激光加热熔化方法，Yan 等^[28]研究了 Al_{80.4}Cu_{13.6}Si₆三元共晶合金的无容器凝固，实验中获得的最大过冷度为 195 K (0.24T_E)。凝固组织主要由 (Al+Si+ θ) 三元共晶和 (Al+ θ) 二相共晶组成。与常规条件凝固相比，声悬浮凝固过程中 (Al+Si+ θ) 三元共晶组织明显细化，(Al+ θ) 二相共晶胞的形态多样化，(Al) 相中 Cu 和 Si 元素的固溶度也显著扩展。

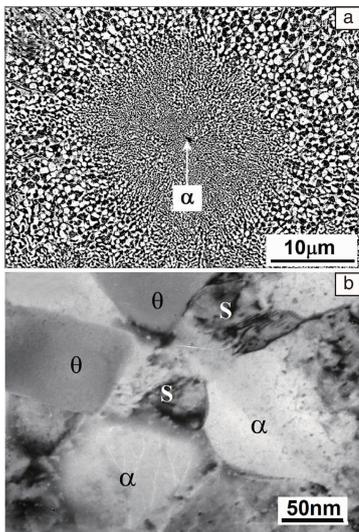


图9 自由落体条件下形成的球形 Al-Cu-Mg 三元共晶胞凝固组织^[26]

Fig.9 Microstructure of Al-Cu-Mg spherical ternary eutectic cell formed in a droplet solidified during free fall^[26]

采用同样的方法, Hong 等^[29]研究了 $Ag_{38.5}Cu_{33.4}Ge_{28.1}$ 三元共晶的无容器凝固。凝固后的合金液滴变形为圆饼状, 在凝固样品的上下表面形成了超过 50 个相互独立的波纹, 波纹胞的直径约 800 μm , 波长约 8 μm 。进一步研究发现, 共晶合金在超声悬浮条件下无容器凝固时, 合金表面普遍形成单个或多个波纹, 波纹的中心刚好对应者一个形核点, 共晶组织自波纹中心开始呈辐射状生长, 生长方向与波纹垂直。

4 结 语

空间模拟条件下的合金凝固研究表明, 熔融玻璃的浸浮净化作用和各种悬浮技术产生的无容器效应可以有效去除异质晶核, 使合金熔体获得深过冷状态并实现非平衡条件下的快速凝固。落管自由落体方法可以同时模拟无容器和微重力状态, 除了可以获得深过冷和高冷速, 还能够消除重力引起的各种流体力学效应, 并产生具有良好空间对称性的温度场和浓度场。目前对三元共晶合金在这方面的研究只是初步的, 得到的一些结果也基本上是表象层面的。要充分认识三元共晶凝固过程的本质性规律, 还有很多研究工作亟待进一步开展, 其中空间实验就是人们关注的焦点之一。早在十多年前, 欧空局 (ESA) 就支持开展了 Al-Cu-Ag 三元共晶合金空间凝固实验的地面预研, 并采用 MAXUS 探空火箭进行了微重力实验^[30,31]。几乎在同一时间, 我国载人航天工程也开始支持 Ag-Cu-Ge 和 Ag-Cu-Sb 两种三元共晶合金的空间凝固研究, 并于 2016 年在天宫二号任务中进行了空间实

验。随着地面模拟技术的不断进步和空间应用工程的继续推进, 相信人们对三元共晶凝固规律的研究和认识一定会更加深入和系统。

参考文献 References

- [1] Hecht U, Grúnásy L, Pusztai T, et al. *Materials Science and Engineering R: Reports* [J], 2004, 46(1): 1-49.
- [2] Choudhury A, Yabansu Y C, Kalidindi S R, et al. *Acta Materialia* [J], 2016, 110: 131-141.
- [3] Akamatsu S, Perrut M, Bottin-Rousseau S, et al. *Physical Review Letters* [J], 2010, 104(5): 056101.
- [4] Anderson I E. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* [J], 2007, 18(1-3): 55-76.
- [5] Wu H, Foo W, Chen S, et al. *Applied Physics Letters* [J], 2012, 101(2): 023107.
- [6] Choi-Yim H, Xu D, Johnson W L. *Applied Physics Letters* [J], 2003, 82(7): 1030-1032.
- [7] Yokoyama Y, Inoue H, Fukaura K, et al. *Materials Transactions* [J], 2002, 43(3): 575-579.
- [8] Zhang N, Yuan Y, Wang X, et al. *Chemical Engineering Journal* [J], 2013, 231: 214-219.
- [9] Lee J H, Yoshikawa A, Murayama Y, et al. *Journal of the European Ceramic Society* [J], 2005, 25(8): 1411-1417.
- [10] Jackson K A, Hunt J D. *Transactions of the Metallurgical Society of AIME* [J], 1966, 236(8): 1129-1142.
- [11] Kurz W, Fisher D J. *Fundamentals of Solidification* [M]. Zurich: Trans Tech Publications, 1998.
- [12] Choudhury A, Plapp M, Nestler B. *Physical Review E* [J], 2011, 83(5): 051608.
- [13] McCartney D G, Hunt J D, Jordan R M. *Metallurgical and Materials Transactions A* [J], 1980, 11(8): 1243-1249.
- [14] Ruggiero M A, Rutter J W. *Materials Science and Technology* [J], 1997, 13(1): 5-11.
- [15] BMajor J F, Rutter J W. *Materials Science and Technology* [J], 1986, 2(6): 534-538.
- [16] Ruggiero M A, Rutter J W. *Materials Science and Technology* [J], 1992, 8(6): 523-530.
- [17] Ruggiero M A, Rutter J W. *Materials Science and Technology* [J], 1996, 12(1): 7-11.
- [18] Ruggiero M A, Rutter J W. *Materials Science and Technology* [J], 1995, 11(2): 136-142.
- [19] Choudhury A. *Transactions of the Indian Institute of Metals* [J], 2015, 68(6): 1137-1143.
- [20] Wang N, Wei B. *Materials Science and Engineering A* [J], 2001, 307(1): 80-90.
- [21] Mei Cexiang(梅策香), Ruan Ying(阮莹), Dai Fuping(代富平), et al. *Acta Physica Sinica* (物理学报) [J], 2007, 56(2): 988-993.
- [22] Ruan Y, Cao C, Wei B. *Science in China Series G: Physics Mechanics and Astronomy* [J], 2004, 47(6): 717-728.

- [23] Ruan Y, Wang N, Cao C D, *et al.* *Chinese Physics Letters* [J], 2004, 21: 1590–1592.
- [24] Ruan Y, Wei B. *Chinese Science Bulletin* [J], 2009, 54(1): 53–58.
- [25] Wang N, Cao C D, Wei B. *Chinese Physics Letters* [J], 1999, 16: 220–223.
- [26] Dai F P, Xie W J, Wei B. *Philosophical Magazine Letters* [J], 2009, 89(3): 170–177.
- [27] Toledo R C, Mattos M B, An C Y, *et al.* *Materials Science Forum* [J], 2010, 660–661: 587–592.
- [28] Yan N, Geng D L, Hong Z Y, *et al.* *Chinese Science Bulletin* [J], 2011, 56(9): 912–918.
- [29] Hong Z Y, Xie W J, Wei B. *Review of Scientific Instrument* [J], 2011, 82: 074904.
- [30] De Wilde J, Nagels E, Lemoisson F, *et al.* *Materials Science and Engineering A* [J], 2005, 413–414: 514–520.
- [31] Ebzeeva S, Froyen L. *Transactions of the Indian Institute of Metals* [J], 2007, 60(2–3): 207–212.

(编辑 吴琛)