



金属合金枝晶生长同步辐射 X 射线实时成像观察

王同敏^{①*}, 许菁菁^①, 李军^①, 黄万霞^②, 刘晟初^①, 李廷举^①

① 大连理工大学材料科学与工程学院, 大连 116024;

② 中科院高能物理研究所, 北京 100039

* E-mail: tmwang@dlut.edu.cn

收稿日期: 2009-10-19; 接受日期: 2009-11-13

国家自然科学基金(批准号: 50601003, 50971032)和教育部新世纪优秀人才支持计划(批准号: NCET-07-0137)资助项目

摘要 同步辐射光源具有高能量、高亮度、高分辨率、单色性好等优点, 其配合高读写速度及高分辨率的 CCD(charge coupled device)成像系统, 可实现对金属合金凝固过程的枝晶生长动态行为进行实时成像观察. 本研究利用北京同步辐射光源, 采用 X 射线衍射增强成像法, 对低熔点的 Sn-Bi 和 Sn-Pb 合金的凝固进程进行实时成像研究, 成功地获得一系列丰富的等轴晶、柱状晶生长行为以及形貌演变的视频图像, 这些成像结果为验证或完善已有的金属合金凝固理论提供了直接的第一手实验数据. 同步辐射 X 射线实时成像技术为研究金属合金凝固理论提供了崭新的实验手段和研究思路.

关键词

枝晶生长
同步辐射
凝固
衍射增强成像
金属

除电熔铸法和粉末冶金法生产的特殊金属制品以外, 大部分的金属制品必须经过一次熔化和凝固过程. 而初生凝固组织往往对产品的性能有决定性的影响. 不论对凝固后直接做铸件使用, 还是要经过塑性加工以制成制品都是如此^[1]. 这驱使学者们利用各种方法去研究金属的凝固组织生长过程. 在金属凝固过程中, 固液两相呈现微观量级的结构, 枝晶组织是最常见的合金凝固微观组织. 深刻理解和掌握凝固过程中枝晶的生长规律是对凝固微观组织进行有效预测和控制的关键. 因此, 枝晶的生长规律是长期以来研究者们感兴趣的热门研究课题之一. 但由于金属的不透明性以及凝固过程处于高温条件, 限制了研究者们对凝固进程进行实时观察, 在过去几十年中金属凝固实验研究大都基于静态分析, 无法获得凝固过程枝晶生长动态信息. 如果能够对不透明合金的凝固过程进行清晰的实时观察, 将大大推进金属凝固枝晶生长理论的研究.

对微观组织形成的研究普遍采用对凝固结束的合金组织进行金相分析, 或者是对凝固中的合金采用淬火瞬间保留其组织, 利用这个方法可以对凝固过程中某特定时刻的组织进行形貌分析^[2-5], 但这样势必也会丢掉此前和此后的微观组织生长信息. 早从 20 世纪 80 年代起, 就有学者利用透明的有机物, 如 NH_4Cl 水溶液等有机物模拟金属的凝固过程, 观察其微观组织的生长过程, 取得了一定的理论进展^[6], 但透明有机物与金属材料在一些重要的物理化学性能参数上存在明显的差别, 使得研究者们不能完全依据有机物凝固的实验观察结果来推理金属合金的凝固微观组织形成过程. 近年来也有学者利用普通的 X 射线对金属在平衡凝固条件下的平面生长和胞状生长进行观测^[7], 但由于普通 X 射线时间和空间分辨率上的限制, 无法实现对微米级的树枝晶结构进行连续的清晰观察.

近十多年来, 计算机数值模拟技术也在凝固微

观组织形成研究领域显示了巨大的潜力, 它已成为一个可以揭示凝固过程规律、预测各种凝固微观组织演变的重要而有效的工具. 专家学者们发展了各种各样的确定论和随机论模型, 并利用这些模型对凝固过程中微观组织的演变和形成机制进行数值模拟研究, 其中包含了非均质形核、枝晶生长、枝晶择优取向以及竞争生长等凝固微观动力学行为^[8-13]. 然而, 数值模拟模型的建立包含着一定的假设和逻辑猜想, 其准确性亟需直接的实验验证.

同步辐射 X 射线成像技术具有高能量、高亮度、高分辨率以及单色性好等优点, 能够满足对枝晶生长的实时成像要求. 近几年来, 国外研究者们利用第三代的同步辐射光源成功地对金属凝固过程中的枝晶生长行为进行了系列研究^[14-19], 而国内相关研究才刚刚开始. 国内的同步辐射光源主要是北京的第一代同步辐射光源和合肥的第二代同步辐射光源, 以及于 2009 年 5 月正式投入使用的上海第三代同步辐射光源. 本文利用北京同步辐射光源对 Sn-Bi 和 Sn-Pb 合金的枝晶生长过程进行了实时成像, 动态捕捉到柱状晶-等轴晶转变、枝晶臂断裂游离、枝晶间竞争生长等凝固微观动力学行为, 对成像结果进行了相应的分析和讨论, 并对成像方法和效果进行了探讨. 可以预见, 同步辐射 X 射线成像技术将会是直接获得凝固过程动态信息的有效手段.

1 实验

本实验在北京中科院高能物理研究所北京同步辐射装置 4W1A 束线形貌站完成, 束线出口距发光点 43 m, 4W1A 束线的 X 射线的能量范围在 4~22 keV, 成像的空间分辨率水平方向 5 μm , 垂直方向 1.8 μm . 探测器使用 Xradia 公司的 CCD 成像系统, 像素 1024×

1024, 分辨率 3.25 μm , 成像视场 3.3 mm×3.3 mm.

本实验采用衍射增强成像法. 与传统的吸收衬度成像相比, 衍射增强成像是基于相位衬度的一种成像方法, 可以通过一种或几种衬度的结合更清楚地显示样品的内部结构^[20]. 同步辐射光通过单色器后, 产生一个特定能量的准平面波穿过样品, 在样品中折射率发生变化并对平面波的波前产生扰动, 使波前的相位发生改变. 相位的改变与样品中电子对 X 射线的散射作用有关, 假设 X 射线沿 z 方向传播, 相位改变可表示为

$$\Phi(x, y) = -r_e \lambda \int_M \rho(x, y, z) dz, \quad (1)$$

式中, (x, y, z) 是位于样品内 (x, y, z) 点处的电子密度, r_e 为经典电子半径, λ 为 X 射线的波长, 积分式表示 X 射线在样品内传播路径 M 对电子密度的积分.

假设 X 射线最初是沿 z 方向传播, 波数为 k , 波函数为 ψ_0 . 由于产生了一个在 x 方向上的相位改变, X 射线的波函数可表示为:

$$\Psi(x, z) = \Psi_0 e^{ikz + i\Phi(x)}. \quad (2)$$

在 X 射线传播方向上的波矢量:

$$k'(x) = \frac{1}{i\Psi(x, z)} \nabla \Psi(x, z) = \frac{\partial \Phi(x)}{\partial x} x + kz. \quad (3)$$

对于相位梯度(沿 x 方向的一阶导数) 较小的情况, 从样品出射的光束偏离初始方向的角度为:

$$\Delta\alpha \approx \frac{1}{k} \frac{\partial \Phi(x)}{\partial x}. \quad (4)$$

由此可见, 波前的相位梯度相当于光束传播方向的改变. 这些方向发生改变的 X 射线携带着样品内部结构的信息, 这些信息经分析晶体放大后记录下来, 从而在图像中形成衬度^[21].

实验原理如图 1 所示, 单色器晶体和分析晶体分

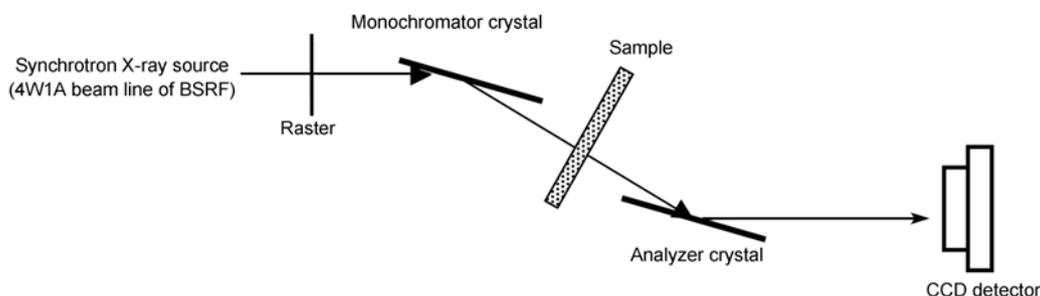


图 1 衍射增强法成像示意图

别取 Si(111)面, 样品置于两晶体中间, 同步辐射 X 射线经单色器晶体单色化后照射样品, 再经分析晶体衍射后记录在介质上, 能被分析晶体衍射到探测器上的 X 射线的角度限制在 10^{-6} rad 量级, 散射噪音几乎落在这个角之外, 因此衍射增强成像法具有很高的信噪比。

本实验采用自行设计的 Bridgman 精密定向凝固加热系统, 如图 2 所示, 采用带加热源的平行铜板对样品进行融化, 外面辅以保温材料进行保温. 利用两个可控硅控温仪分别控制热炉室和冷炉室的温度, 控制样品在不同温度梯度下凝固. 片状样品可以在两个炉室之间沿垂直方向自由移动. 本实验准备了两种成分的合金样品, 取纯度为 99.99%Sn, 99.99%Pb 和 99.99%Bi 以一定的比例在真空熔炼炉中分别配制成 Sn-50 wt%Pb 和 Sn-12 wt%Bi 合金. 两种成分的合金样品分别经过切片、打磨和抛光成 200 μm 厚的预制样品. 如图 3 所示, 将预制样品放入两片厚为 800 μm 的石英玻璃片中, 在两片石英玻璃片中加入中空带凹槽的聚四氟乙烯薄片将金属样品固定, 加入的聚四

氟乙烯薄片厚为 50 μm , 玻璃片外侧用夹子夹持. 将含有预制样品的石英玻璃片竖直放入加热炉中, 调节两炉的温度到合金液相线以上, 使预制样品受热熔化后在石英玻璃片的挤压力和重力作用下流入预制样品下面的聚四氟乙烯片制成的凹槽型腔, 保温一定的时间后, 分别调节冷热炉室的温度, 以达到预定的温度梯度, 通过控制步进电机速度, 使样品从热炉室缓慢下拉到冷炉室实现逐步定向凝固, 并对样品的凝固过程进行同步辐射实时成像. 由于聚四氟乙烯薄片厚度的限制, 流入预制的聚四氟乙烯片的凹槽后形成最终样品厚约为 80 μm ($\pm 5 \mu\text{m}$), 最终样品尺寸为 8 mm \times 20 mm. 其中, 步进电机的速度最低可控制在 5 $\mu\text{m}/\text{s}$, 成像的曝光时间在 1~20 s 之间, 同步辐射选取单色光能量为 20 keV. Bridgman 定向凝固装置安装上成像样品, 然后置于北京同步辐射装置 4W1A 束线形貌站上, 最终装配好的实物装置如图 4 所示(CCD 探测器图中未显示出来).

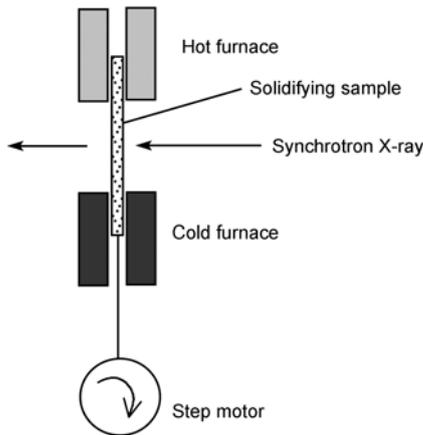


图 2 Bridgman 加热炉示意图

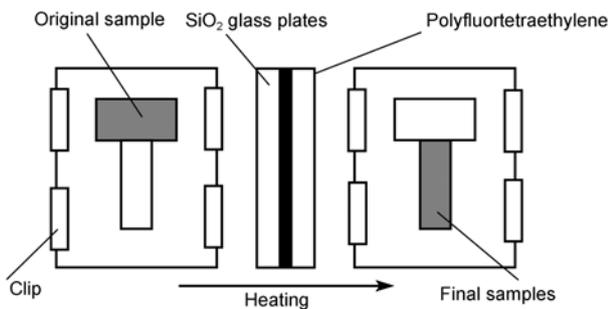


图 3 成像样品制备示意图

2 成像结果与分析

2.1 等轴/柱状枝晶生长

选取成分为 Sn-50 wt%Pb(近共晶成分)的合金样品, 加热炉的温度梯度控制在 100 K/cm, 调节冷热炉的温度同时以 2 K/min 的速率降温, 来观察枝晶的形成过程. 随着温度的降低, 如图 5 所示, 首先凝固结晶出黑色的富集 Pb 的枝晶, 而 Sn 则被不断地排到枝晶周围的液相中, Pb 和 Sn 对 X 射线的吸收能力有很大的不同再加上固液相结构的不同, 于是形成良好的吸收衬度和相位衬度, 因而 CCD 可以捕获到清晰的 X 射线图像. 从图像中可以看到, 在样品的底部枝晶结构倾向于等轴枝晶生长, 在过冷的熔体中, 新的晶核在界面前沿不断的形成并继续长大, 但由于样品位于两片石英玻璃片内, 空间上受到很大程度的限制, 很难判断新晶核是在液体中直接形核还是依附在石英玻璃片上形核. 由于冷热炉之间始终存在 100 K/cm 的纵向温度梯度, 所以可以看到等轴枝晶前沿出现了发达的柱状枝晶.

2.2 柱状胞晶生长

选取成分为 Sn-12 wt%Bi 合金样品, 凝固过程中控制其温度梯度为 150 K/cm, 上下两炉的温度保持不变, 在凝固过程中步进电机控制先以 200 $\mu\text{m}/\text{s}$ 的速度

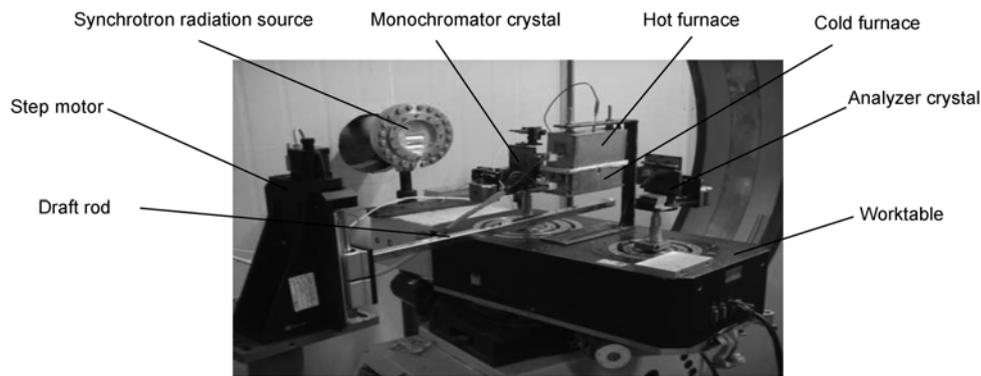
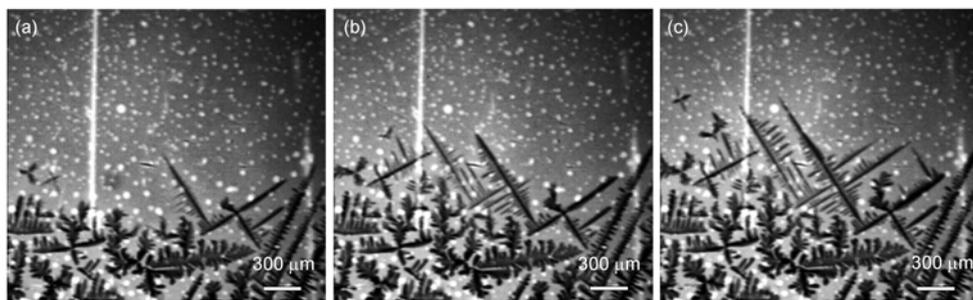


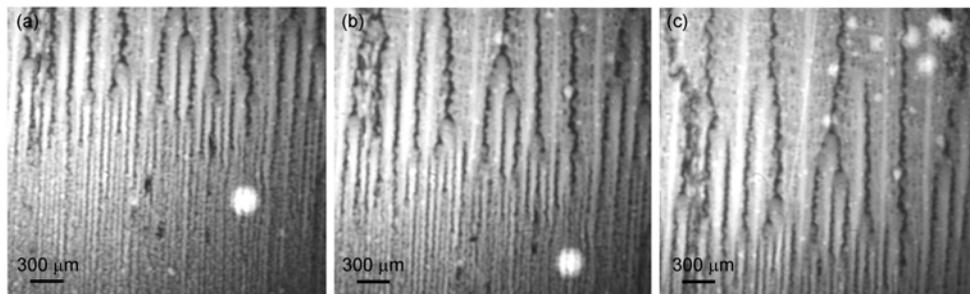
图4 北京同步辐射装置 4W1A 束线上组装好的成像及凝固装置

图5 Sn-50 wt%Pb 合金等轴/柱状枝晶生长(温度梯度为 100 K/cm, 冷却速率为 2 K/min)
(a) t_0 ; (b) t_0+30 s; (c) t_0+60 s

下拉样品, 下拉的过程中将拉速逐步减慢到 $7 \mu\text{m/s}$, 得到如图 6 的成像结果. 由图中可以看出拉速在 $200 \mu\text{m/s}$ 时, 得到极细的柱状胞晶, 随着拉速的减小, 柱状胞晶明显增粗. 由于样品是从高温炉下移向低温炉, 因而降低拉速意味着降低冷却速度, 冷却速度越小, 晶粒生长速度越慢, 晶粒间的溶质富集程度越高, 竞争也越激烈, 劣汰出的枝晶被抑制生长或被兼并融合, 而优胜出的晶粒则自由生长, 柱状晶臂明显粗大, 相应地, 枝晶间距也变大.

2.3 柱状晶-等轴晶转变

选取成分为 Sn-12 wt%Bi 合金样品, 凝固过程中控制冷热炉的温度梯度为 150 K/cm , 调节冷热炉的温度同时以 2 K/min 的速率降温. 不同时刻枝晶生长成像图片如图 7 所示. 图 7(a) 中生长出的呈白色的树枝晶富集 Sn, 呈黑色的液相中富集 Bi. 图 7(b) 和 (c) 中柱状晶的生长前沿出现等轴晶的晶核(箭头指示)并迅速长大, 阻碍了柱状晶的进一步长大, 发生了典型的柱状晶-等轴晶转变现象. 产生这一现象的主要

图6 Sn-12 wt%Bi 合金柱状胞晶生长(温度梯度为 150 K/cm, 拉速为 $200 \mu\text{m/s} \sim 7 \mu\text{m/s}$)
(a) t_0 ; (b) t_0+54 s; (c) t_0+108 s

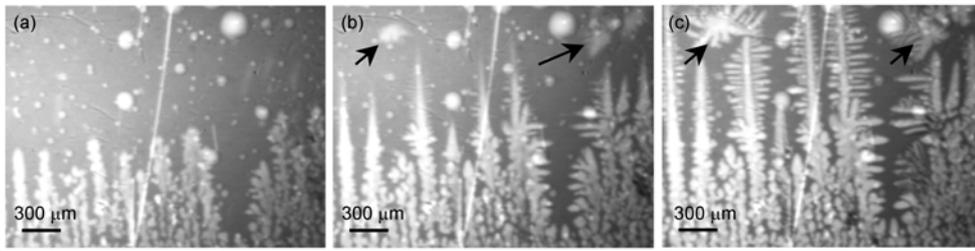


图 7 Sn-12 wt%Bi 合金柱状晶-等轴晶转变(温度梯度为 150 K/cm, 冷却速率为 2 K/min)
(a) t_0 ; (b) t_0+40 s; (c) t_0+80 s

原因是, 随着柱状枝晶的不断长大, 液固界面前沿的溶质不断地进行着再分配, 使得柱状枝晶前沿的溶质不断地富集, 形成成分过冷区, 一旦界面前沿的过冷度达到临界形核过冷度, 则该区域迅速形核长大形成柱状枝晶前沿的等轴晶区并阻碍了柱状枝晶的进一步生长. 利用同步辐射 X 射线实时成像技术能够直接观察到这种经典的柱状晶-等轴晶转变的动态过程, 势必会引发研究金属凝固的学者们对这一成像技术的更多期待, 可以预见, 利用这一实时成像技术将可能观察到更多的已知或未知的凝固过程微观动力学现象.

2.4 枝晶臂的断裂和游离

选取成分为 Sn-12 wt%Bi 合金样品, 控制温度梯度为 60 K/cm, 调节冷热炉的降温速率均为 2 K/min. 得到系列等轴晶自由生长视频图像, 如图 8 所示(仅取

6 个典型时刻的图像). 随着凝固的进行, 一个小枝晶在根部发生断裂(见图 8(a)和(b)中的 I 位置), 由于先结晶的固相中富集 Sn, 断裂的枝晶臂 I 受到浮力作用朝竖直向上的方向游离, 断裂后的枝晶臂成为新晶核并迅速长大, 形成新的等轴晶(见图 8(c)~(f)中的 I 位置). 同样地在图 8(b)~(f)中的位置 II 处枝晶臂根部也发生了断裂、上浮游离现象, 并成为新的等轴晶晶核. 在断裂的枝晶臂游离上浮过程中, 由于其他先有的枝晶臂的阻碍以及石英玻璃片制成的容器壁的粘滞作用, 新晶核上浮到一定程度就停止了但继续生长, 如图中所示, 两个断裂的枝晶臂的根部均呈细的倒三角形形状, 从而可以认为, 枝晶臂断裂的原因极有可能是由于根部溶质富集严重, 造成根部重熔断裂, 也就是俗称的“缩颈”现象. 利用同步辐射 X 射线实时成像视频, 直接验证了以前学者们关于断裂游离的

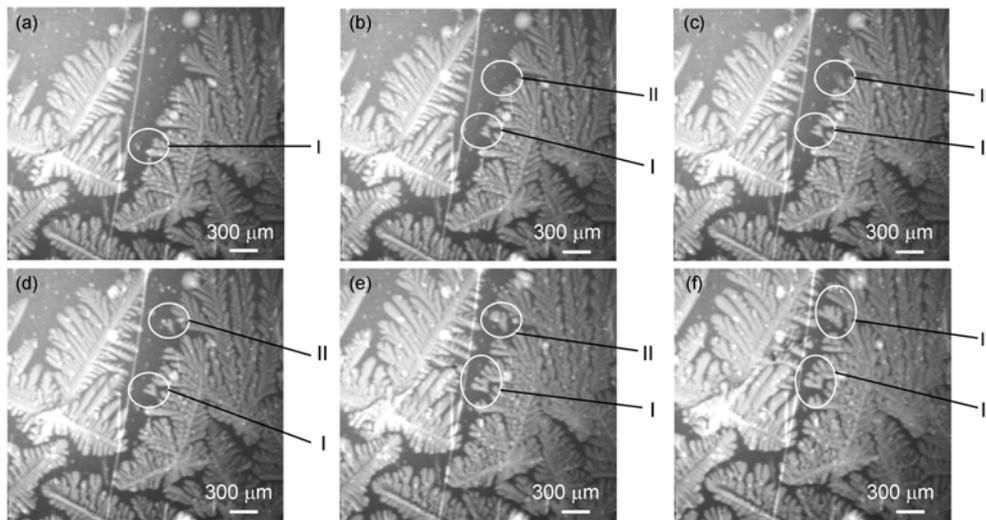


图 8 Sn-12 wt%Bi 合金枝晶臂的重熔断裂、游离上浮(温度梯度为 60 K/cm, 冷却速率 2 K/min)
(a) t_0 ; (b) t_0+15 s; (c) t_0+30 s; (d) t_0+45 s; (e) t_0+135 s; (f) t_0+225 s

枝晶碎片是新晶核来源之一的推断.

2.5 枝晶间的竞争生长

枝晶生长过程中,取向有利的方向优先生长,与此同时,其他的生长方向将受到抑制.如图9所示,Sn-12 wt%Bi合金,凝固过程中控制冷炉的温度梯度为 -110 K/cm (此时冷炉温度高于热炉),调节冷炉的温度同时以 2 K/min 的速率降温.如I处所指的枝晶,由于其两侧的枝晶生长取向更为有利,I枝晶的生长受到阻碍.图中II处所指的两个枝晶开始生长时晚于其两侧的两个枝晶,而其两侧先于生长的两个枝晶在生长过程中,会将因溶质再分配而析出的溶质不断地堆积到II处所指的两个枝晶的生长前沿,Sn-Bi二元系合金在缓慢冷却条件下凝固的驱动力主要来自于溶质的扩散迁移,溶质在生长前沿的堆积,对溶质扩散控制型的枝晶生长起到了明显的阻碍作用,同时富集的溶质降低了合金的熔点,也即降低了熔体的过冷,因而从图中可以看到II处所指的两个枝晶的生长受到了明显的抑制.

选择Sn-Bi系和Sn-Pb系二元合金作为探索性研究对象,原因主要是:1)熔点低,降低了对凝固加热炉的要求,易于设计制造;2)这两类合金二元相图己为材料研究者们所熟知,可以准确设计所需要的合金成分;3)Sn与Bi以及Sn与Pb对X射线的吸收系数有较大差别,同步辐射X射线成像原理是利用被观察物体不同部位对X射线的吸收差别和相位改变来成像的.Sn-Bi合金在枝晶生长过程中,由于液固界面处的溶质再分配,使得液固两相含Bi或者含Sn量有较大的差别,这提高了X射线成像的吸收衬度,再加上液固两相结构的本质区别,因此也为X射线成像提供了很好的相位衬度.Sn-Pb合金也有同样的成像原理.

本研究的主要目的是探索并尝试应用同步辐射

X射线实时成像技术,实现对金属合金凝固过程枝晶生长动态行为和形貌演变的直接在线观察,成像实践表明,用此方法可得到一系列丰富的合金凝固微观动力学现象,如金属合金凝固过程枝晶的形核、生长形貌动态演变、枝晶臂断裂游离、枝晶间竞争生长等.同步辐射X射线实时成像技术是研究凝固理论的一种崭新的实验技术手段,可以预见,该实验技术在研究结晶相变、界面相互作用、成分过冷等方面,都将有巨大的应用潜力可挖掘,该实验技术对于完善凝固理论、验证理论模型和数值模拟结果都将起到重要的甚至不可替代的作用.

当然,随着同步辐射X射线实时成像技术在金属合金凝固领域的不断应用和探索,我们也看到了它目前所存在的一些局限性,在我们的成像实验过程中,薄片合金样品被限制在两片石英玻璃中间的狭小空间,显然,在一定程度上会影响凝固过程中的形核率以及枝晶生长动态行为,如图8所示的枝晶臂断裂游离现象,可能正是由于这种空间的限制阻碍了断裂枝晶臂的游离和自由生长.并且,这种薄的准三维空间对凝固过程中熔体的对流以及溶质的传输都存在一定影响.采用这种薄片状的准三维合金样品主要是为了提高成像的衬度,如果合金样品过厚对X射线吸收过多,CCD探测器将因无法获得足够的X射线而使得成像效果不佳,并且过厚的样品中会含有多层枝晶,这样所获得的图像中会有重叠的枝晶影像,从而无法对图像进行准确的判断和有效的分析.当然,对这种准三维结构合金样品的凝固进行研究仍具有重要的借鉴和参考意义,过去曾有研究者采用有类似空间限制的透明有机溶液来进行枝晶生长的研究,得到很多有价值的研究成果^[22].在实际的铸造中,也存在很多类似的空间限制.另外,枝晶生长数值模拟也大多都是建立在二维尺度的计算.

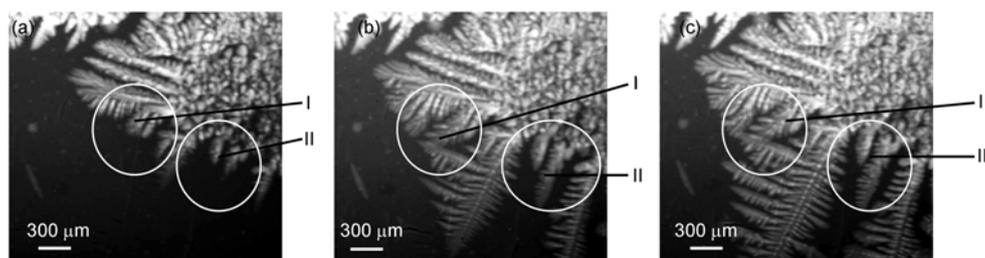


图9 Sn-12 wt%Bi合金枝晶间的竞争生长(温度梯度为 -110 K/cm ,冷却速率 2 K/min)

(a) t_0 ; (b) $t_0+15\text{ s}$; (c) $t_0+30\text{ s}$

为了获得金属微观组织的三维结构图像, 一种新的基于 CT(computed tomography)切片扫描技术的同步辐射 X 射线三维成像技术正悄然兴起, 但遗憾的是, 这种三维成像技术还无法对动态生长的枝晶进行实时成像, 只可能获得静态的三维图像。

3 结论

本研究利用中科院高能物理研究所的第一代同步辐射光源, 采用基于相衬的衍射增强成像方法以及改良的成像样品和凝固装置, 得到了和国外研究小组相媲美的成像效果(基于第三代同步辐射光源获

得的最新研究成果)。所获得的成像视频揭示了柱状晶-等轴晶转变、等轴晶自由生长、柱状晶定向生长、枝晶臂断裂游离以及枝晶间竞争生长等一系列凝固微观动力学现象, 这些成像结果为验证或完善金属合金凝固理论提供了直接的第一手实验数据。同步辐射 X 射线实时成像技术为研究金属合金凝固结晶理论提供了崭新的实验技术, 也几乎是目前实现原位在线观察金属合金凝固过程微观动力学现象的唯一手段, 随着对其进一步的探索应用, 其广阔的应用前景将更值得期待。外场(如电场、磁场、超声场)作用下枝晶生长行为和形貌演变的同步辐射实时成像工作将成为我们后续研究的主题。

参考文献

- 1 大野笃美. 金属凝固学. 北京: 机械工业出版社, 1983. 1—2
- 2 Young K P, Kirkwood D H. The dendrite arm spacings of aluminum-copper alloys solidified under steady-state conditions. *Metall Trans A*, 1975, 6A: 197—205
- 3 Peterson P W, Kattamis T Z, Giamei A F. Coarsening kinetics during solidification of Ni-Al-Ta dendrite monocrystals. *Metall Trans A*, 1980, 11A: 1059—1065
- 4 Grugel R N. Secondary and tertiary dendrite arm spacing relationships in directionally solidified Al-Si alloys. *J Mater Sci*, 1993, 28: 677—683
- 5 Flemings M C, Kattamis T Z, Bardes B P. Dendrite arm spacing in aluminum alloys. *Trans AFS*, 1991, 176: 501—506
- 6 介万奇, 周尧和. 柱状晶向等轴晶转变过程的模拟实验研究. *西北工业大学学报*, 1988, 6: 29—40
- 7 Grange G, Gastaldi J, Jourdan C, et al. Evolution of characteristic pattern parameters in directional solidification of thin sample of a dilute Al-Cu alloy. *J Cryst Growth*, 1995, 151: 192—199
- 8 朱鸣芳, 戴挺, 李成允, 等. 对流作用下枝晶生长行为的数值模拟. *中国科学 E 辑: 技术科学*, 2005, 35: 673—688
- 9 朱鸣芳, 于金, 洪俊钧. 金属凝固显微组织的计算机模拟. *中国工程科学*, 2004, 6: 8—16
- 10 朱昌盛, 王智平, 荆涛, 等. 对流影响枝晶生长的相场法模拟研究进展. *材料导报*, 2004, 18: 26—28
- 11 Lan C W, Hsu C M, Liu C C, et al. Adaptive phase field simulation of dendritic growth in a forced flow at various supercoolings. *Phys Rev E*, 2002, 65: 061601
- 12 许庆彦, 熊守美, 柳百成. 铸造合金的微观组织模拟研究进展. *材料导报*, 2002, 16: 11—14
- 13 Tönhardt R, Amberg G. Dendritic growth of randomly oriented nuclei in a shear flow. *J Crystal Growth*, 2000, 213: 161—187
- 14 Thi H N, Jamgotchian H, Gastaldi J, et al. Preliminary *in situ* and real-time study of directional solidification of metallic alloys by X-ray imaging techniques. *J Phys D-App Phys*, 2003, 36: A83—A86
- 15 Billia B, Bergeon N, Thi H N, et al. Cumulative mechanical moments and microstructure deformation induced by growth shape in columnar solidification. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 126105
- 16 Yasuda H, Ohnaka I, Kawasaki K, et al. Direct observation of stray crystal formation in unidirectional solidification of Sn-Bi alloy by X-ray imaging. *J Crystal Growth*, 2003, 262: 645—652
- 17 Mathiesen R H, Arnberg L. X-ray radiography observations of columnar dendritic growth and constitutional undercooling in an Al-30 wt%Cu alloy. *Acta Mater*, 2005, 53: 947—956
- 18 Mathiesen R H, Arnberg L, Mo F, et al. Time resolved X-ray imaging of dendrite growth in binary alloys. *Phys Rev Lett*, 1999, 83: 5062—5065
- 19 Li B, Brody H D, Kazimirov A. Real-time observation of dendrite coarsening in Sn-13%Bi alloy by synchrotron microradiography. *Phys Rev E*, 2004, 70: 062602
- 20 朱佩平, 袁清习, 黄万霞, 等. 衍射增强成像原理. *物理学报*, 2006, 55: 1089—1098
- 21 黄万霞, 袁清习, 田玉莲, 等. 同步辐射硬 X 射线衍射增强成像新进展. *物理学报*, 2005, 54: 677—681
- 22 LaCombe J C, Koss M B, Glicksman M E. Nonconstant tip velocity in microgravity dendritic growth. *Phys Rev Lett*, 1999, 83: 2997—3000