

元胞自动机方法模拟枝晶生长^{*}

李 强[†] 李殿中 钱百年

(中国科学院金属研究所, 沈阳 110016)

(2003 年 10 月 22 日收到 2004 年 3 月 4 日收到修改稿)

为了能够准确反映具有明显界面的枝晶生长过程, 利用元胞自动机方法模拟了凝固过程中固液两相具有不同热物理性质的枝晶生长。在模拟过程中发现, 凝固过程中溶质易于富集在枝晶臂之间, 同时随着凝固时间的延长, 界面前沿的溶质浓度梯度和温度梯度逐渐下降。利用模拟所得的枝晶尖端半径与理论计算的相比较, 发现随着枝晶尖端速度的增加, 枝晶尖端半径逐渐下降, 模拟与理论结果符合较好, 偏差小于 $1\mu\text{m}$ 。

关键词: 枝晶生长, 凝固, 偏析, 模拟

PACC: 6150J, 6185, 6610C, 8310F

1. 引 言

枝晶是最为常见的一种凝固组织, 它的形貌和大小直接影响铸件的使用性能。研究枝晶的生长过程有利于深入理解凝固本质。几十年来, 枝晶模拟取得了很大的进展^[1-13]。目前最为普遍的就是利用相场方法对枝晶进行模拟, 这种方法具有不追踪界面, 容易处理复杂界面的拓扑变化。Beckermann 和 Karma 等人都已经成功地将枝晶生长模拟从 2D 做到 3D^[1,2]。但是由于相场方法需要引进一个并没有物理意义的相函数, 引起较多研究者的质疑。同时由于在相场方法中, 网格的划分必须小于界面层的厚度, 这就限制了这种方法的计算规模。另外, 相场模型中固液界面层厚度是一个变量, 在不同的位置界面厚度不同, 与实际观察并不相符。

另一种较为流行的方法就是界面跟踪方法, 在这种方法中, 固液界面必须满足 Gibbs-Thomson 条件, 从而能够反映在具有不连续的热物理性质的界面区域内, 固液界面的演变。这种方法能够知道固液界面的确切位置、温度和界面推移速度。其中较为经典的就是 Juric 和 Tryggvason 运用界面跟踪方法模拟枝晶生长^[3,4]。但是这种方法需要知道枝晶的每个细节才能得到固液界面的位置, 因而计算规模同样不能扩大。

元胞自动机在模拟枝晶生长中具有以下几个方面的优点, 1) 计算尺度容易扩大。由于没有网格必须要小于界面层厚度这一要求, 因而在同样计算量的情况下, 网格单元尺寸可以扩大。2) 能够跟踪到固液界面。3) 能够显示凝固过程中温度、溶质浓度的变化。以往对枝晶的模拟中研究者为了简化计算, 通常将材料的热物理性质设置为一个常数^[5-9], 不随凝固的进行而变化, 这就使得热量的传输途径与实际不符。同时在溶质扩散中, 如果将界面区域看成是溶质扩散的一个连续场, 那么会使固液界面前沿的区域为非平衡的区域。因此在本次模拟中将固液界面看出是一个具有明显界面、且其厚度可以忽略的一个薄膜, 但在界面的两侧, 溶质不能相互扩散。

2. 数学物理模型

为了能够准确的模拟枝晶生长, 模型首先假设: 1) 凝固过程中材料密度不变; 2) 整个模拟区间分为固相、液相和界面, 只有界面区域能够长大; 3) 溶质扩散不能穿过界面, 固相溶质只能在固相中扩散, 液相溶质只能在液相中扩散。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(\alpha \nabla T) + \frac{L}{\rho C_p} \cdot \frac{\partial f_s}{\partial t}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla(D \nabla C), \quad (2)$$

^{*} 国家高技术研究发展计划(批准号 2001AA339030)资助的课题。

[†] E-mail: address: qli@imr.ac.cn.

$$V^*(C_1^* - C_s^*) = (D_s \nabla C_s - D_1 \nabla C_1) \cdot \mathbf{n} \quad (3)$$

其中 α 为热扩散系数 (m^2/s) , T 为温度 (K) , t 为时间 (s) , D 溶质扩散系数 (m^2/s) , C 为溶质浓度 , V^* 为界面速度 (m/s) , \mathbf{n} 为方向矢量 , L 凝固潜热 (kJ/kg) , C_p 等压热容 ($\text{kJ}/(\text{kg} \cdot \text{K})$) , 下标 s 和 l 代表固相和液相. 当液相凝固时 , 一部分溶质就会排到固液界面前沿 , 界面前沿溶质分配系数为一个常数 $C_s^* = kC_1^*$ 其中 k 为一个常数.

根据 KGT 模型 , 固液界面处温度为^[10]

$$T^* = T^{\text{eq}} + m(C_1^* - C_0) - \Gamma K(\varphi, \theta), \quad (4)$$

其中固液界面曲率为^[9]

$$K = \frac{2(f_s)_x(f_s)_y(f_s)_{xy} - (f_s)_y^2(f_s)_{xx} - (f_s)_x^2(f_s)_{yy}}{[(f_s)_y^2 + (f_s)_x^2]^{1/2}}. \quad (5)$$

考虑到固液界面的扰动作用 , 每一时间步的固相分数变化量为^[5,6]

$$\delta f_s = (1 + \eta \cdot (1 - 2p)) \cdot \left(v_x + v_y - v_x v_y \cdot \frac{dt}{a} \right) \frac{dt}{a}. \quad (6)$$

为了能够准确的计算出溶质浓度 , 在每一时刻任意单元 A 与其最近邻单元 B 之间的溶质流为^[13]

$$\begin{aligned} dc_l &= \frac{dt \cdot D_l \cdot (C(B) - C(A))}{(1 - 0.5 \cdot (f_s(B) + f_s(A))) \cdot a^2}, \\ dc_s &= \frac{dt \cdot D_s \cdot (C(B) - C(A))}{0.5 \cdot (f_s(B) + f_s(A)) \cdot a^2}, \end{aligned} \quad (7)$$

$$C_l^{n+1}(A) = C_l^n(A) + \sum_{i=1}^n dc_i(k), \quad (8)$$

其中 N 为最近邻的单元数. 下标 I 为固相或液相. a 网格尺寸.

本文中溶质浓度分为三种 固相溶质浓度、液相溶质浓度和平均溶质浓度. 在固相(液相)中 , 平均溶质浓度为固相(液相)溶质浓度. 在固液界面区域内 , 平均溶质浓度为

$$C = C_1^*(1 - f_s) + C_s^* f_s.$$

为了使计算收敛 , 时间步长的选用为^[5-9]

$$\delta t = \min\left(\frac{1}{5} \left(\frac{a^2}{D_s} \cdot \frac{a^2}{D_1} \cdot \frac{a}{V_{\text{max}}} \right)\right). \quad (9)$$

当液相单元完全凝固后 , 它就会俘获周围邻近液相单元使其成为界面单元. 俘获的规则见文献[4].

模拟过程中使用的参数见表 1.

模拟区域的尺寸为 $0.015\text{mm} \times 0.015\text{mm}$. 中心线主要用于提取的温度和溶质浓度检测线. 中心点为固相晶核. 模拟区间划分为 150×150 网格 , 界面

换热系数为 $1000\text{W}/\text{m}^2\text{K}$, 初始液相溶质浓度为 0.6% , 固相溶质浓度为 0.204% , 初始温度为 1713K , 总的计算步为 500000 步.

表 1 材料参数

密度 (kg/m^3)	7300
固相的导热率 ($\text{W}/\text{m}^2\text{K}$)	40
液相的导热率 ($\text{W}/\text{m}^2\text{K}$)	25
固相的比热容 ($\text{kJ}/(\text{kg} \cdot \text{K})$)	650
液相的比热容 ($\text{kJ}/(\text{kg} \cdot \text{K})$)	800
固相中溶质扩散系数 ($10^{-10}\text{m}^2/\text{s}$)	5
液相中溶质扩散系数 ($10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$)	2
凝固潜热 (kJ/kg)	284
液相线斜率	-82
Gibbs-Thomson 自由能系数	1.9×10^{-7}
溶质分配系数	0.34
熔点/K	1763

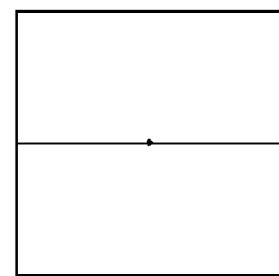


图 1 模拟区域和检测线的示意图

3. 模拟结果与分析

图 2 反映出凝固过程中溶质浓度的演变. 图 2 (a) 为凝固初始阶段 , 其凝固时间为 2.63727×10^{-5} s , 枝晶已经开始形成 , 并优先沿着 x 方向长大. 它反映出凝固过程中固液界面沿着 x 和 y 的长大速度最大. 在图 2(a) 中固相溶质浓度为 0.4% , 枝晶周围溶质浓度超过 0.9% , 在这层之外的溶质浓度约为 0.7% , 而远离枝晶区域溶质浓度为 0.6% . 图 2 (b) 凝固时间为 7.87882×10^{-5} s , 枝晶主干继续优先沿着 x 和 y 方向长大 , 枝晶主干之间的溶质浓度最高 , 溶质浓度超过 0.9% . 图 2(c) , 凝固时间为 1.31175×10^{-4} s , 枝晶的固相溶质浓度在 0.3% 左右 , 在枝晶的周围的液相溶质浓度约为 0.9% . 从图 2 中可以看出随着凝固时间的延长 , 枝晶内固相溶质浓度逐渐下降 , 而枝晶周围溶质浓度超过 0.9% 的区域也逐渐减少.

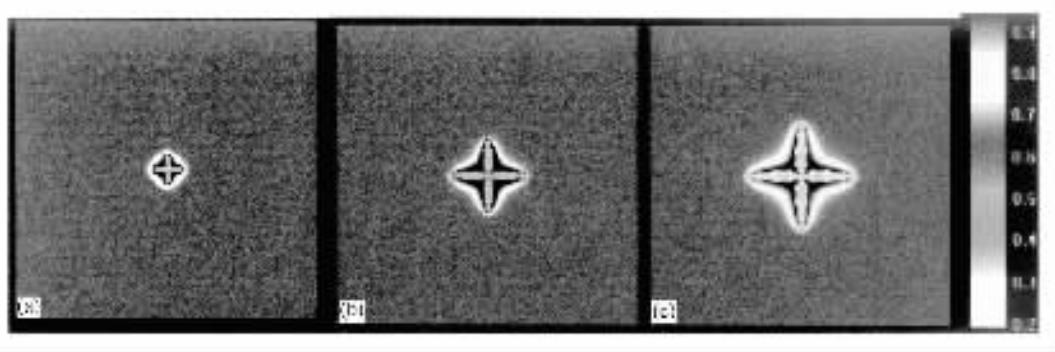


图 2 枝晶演变过程中的溶质浓度变化 (a) 2.63727×10^{-5} s ;(b) 7.87882×10^{-5} s ;(c) 1.31175×10^{-4} s

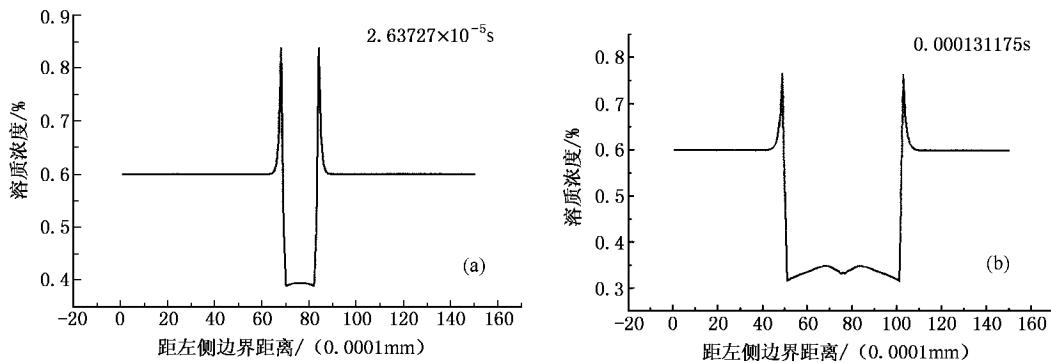


图 3 中心线上的溶质浓度分布

图 3(a) 显示在凝固初期, 凝固时间为 2.63727×10^{-5} s, 固相溶质浓度接近 0.4%, 而在枝晶尖端界面区域的溶质浓度约为 0.85%, 这说明界面前沿的溶质浓度要超过 0.85%。当凝固时间为 1.31175×10^{-4} s, 见图 3(b), 此时固相溶质浓度可以分为两个部分, 一部分是固相晶核的周围 0.0005mm 的范围内, 固相溶质浓度由中心向两边逐渐升高。另一部分为第一部分的外侧到枝晶尖端这部分, 固相溶质浓度由内而外逐渐降低。另一方面, 界面区域和固相区域的溶质浓度呈下降趋势, 见图 3(a) 和 (b)。这主要是由于在凝固开始阶段, 界面前沿固相溶质浓度较固相晶核的溶质浓度高, 使得晶核周围的界面区域内固相溶质向固相晶核扩散, 这就使得在图 3(a) 中的固相溶质浓度较高, 约为 0.4%, 而枝晶尖端的液相溶质浓度会受到其邻近的枝晶尖端溶质浓度影响, 使得界面区域内的液相溶质浓度向外扩散的界面较小, 液相溶质浓度较高。随着凝固的进行, 枝晶沿着 x, y 方向逐渐长大, 枝晶尖端之间的距离逐渐增大, 固液界面逐渐增大, 使得界面前沿的溶质有更大的面积向外侧扩散, 这就导致了界面区域内的溶质浓度逐渐下降, 由此产生固相溶质浓度逐渐下降。

图 4 为中央线上的温度分布。图 4(a) 为凝固时间为 2.63727×10^{-5} s 时的温度分布, 在中心部位温度最高, 这部分区域为固相区域, 其导热系数较作为液相的导热系数大, 凝固释放的潜热更容易在固相中传输, 这就使得中心的固相温度最高。随着凝固的进行, 这个模拟区间的温度逐渐上升, 见图 4(b), 此时最高温度为 1463°C , 较图 4(a) 的最高温度 1445°C 高了 18°C , 这说明在边界处热量传输出去的速率小于凝固产生的热量速率。另外, 在图 4 中还可以看到, 在图 4(a) 中温度差最大为 2.5°C , 而到了图 4(b) 中, 温度差最大为 1.2°C 。这说明随着凝固时间的延长, 整个模拟区间的区域温度梯度在逐渐减小。产生这种现象的主要原因就是随着固相分数的增加, 这个区域内各个单元之间的热量交换加快了, 使得温度趋向均衡。

图 5 为凝固时间与枝晶尖端的速度关系, 从中可以看出随着凝固时间的延长, 界面尖端的速度呈下降趋势。这种界面速度是由界面前沿的溶质浓度梯度控制的, 见方程(3)。产生这种现象的主要原因在于枝晶前沿的浓度梯度随着时间的延长而降低, 见图 3(b), 这就使固液界面推移的速度下降。

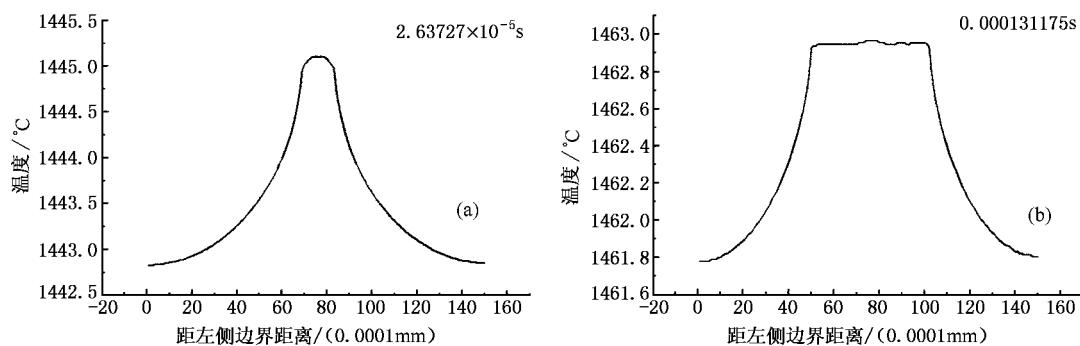


图4 中心线上的温度分布

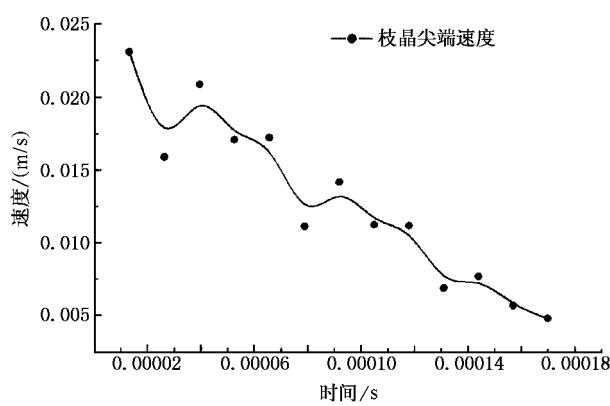


图5 枝晶尖端的速度

Kurz 等人在研究中发现^[10] ,枝晶尖端半径与枝晶的长大速度存在着如下关系:当小的 Peclat 时 ,
 $VR^2 = \frac{4\pi^2 D\Gamma}{k\Delta T_0}$,其中 $\Delta T_0 = mC_0(k-1)/k$. 从这个关系中可以得到在每一个速度下的枝晶尖端半径 ,见图 6.

通过对理论计算的枝晶尖端半径和实际模拟的枝晶尖端半径可以发现 ,模拟的枝晶尖端半径与理论计算的枝晶尖端半径在速度大于 0.017 m/s 时吻合较好 ,而在速度较小时有些波动 ,产生这种现象的原因可能是在此凝固条件下 Ivantsov 不是趋近于 0 ,也就是说 Peclat 不是足够的小 ,这就使得 VR^2 不是一个恒定的值 . 同时在模拟过程中 ,在固液界面前沿存在着随机扰动 ,这也是产生半径波动的一个因

素 . 但理论计算的枝晶尖端半径与模拟的枝晶尖端半径相差不大 ,全部在 $1\mu\text{m}$ 以内 ,说明模拟结果比较可信 .

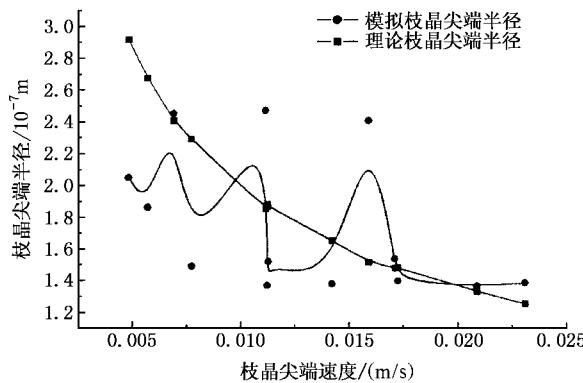


图6 枝晶尖端半径的理论计算与模拟结果对照

4. 结 论

通过模拟枝晶的生长过程可以得到下面结论 :

1. 在枝晶的演变过程中 ,枝晶主干之间容易形成溶质富集 ,随着凝固时间的延长 ,这种富集程度将有所减弱 .
2. 随着凝固时间的延长 ,枝晶前沿的温度梯度和溶质梯度相应下降 ,引起枝晶尖端的生长速度下降 .
3. 模拟枝晶尖端半径与理论计算的枝晶尖端半径相差全部在 $1\mu\text{m}$ 以内 .

[1] Beckermann C , Li Q and Tong X 2001 *Science and Technology of Advanced Materials* . 2 117

[2] Karma A and Wouter-Jan Rappel 1999 *Physical Review E* **60** 3614

[3] Juric D and Tryggvason G 1996 *Journal of Computational Physics* **123** 127

[4] Jocat A and Rappaz M 2002 *Acta Materialia* **50** 1909

- [5] Dilthey U and Pavlik V and Reichel T 1997 *Mathematical modeling of weld phenomena* 3. rd. The Institute of Materials (The University of Cambridge. UK) 85
- [6] Dilthey U and Pavlik V 1998 *Proceedings of the modeling of casting , welding and advanced solidification processes-VIII* ,(Brigham UK) 589
- [7] Nastac L 1999 *Acta Mater.* **47** 4253
- [8] Zhu M F Kim J M and Hong C P 2001 *ISIJ Inter.* **41** 992
- [9] Lazaro Beltran-Sanchez and Stefanescu Doru M 2003 *Metal Mater Trans.* **34A** 367
- [10] Kurz W , Giovanola B and Trivedi R 1986 *Acta Metall.* **34** 823
- [11] Zi B T *et al* 2003 *Acta Phys. Sinc.* **52** 115 (in Chinese) 訾炳涛等 2003 *物理学报* **52** 115]
- [12] Li R B *et al* 2003 *Acta Phys. Sinc.* **52** 3135 (in Chinese)[李荣斌等 2003 *物理学报* **52** 3135]
- [13] Li Q *et al* 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 143

Modeling of dendritic growth by means of cellular automaton method^{*}

Li Qiang Li Dian-Zhong Qian Bai-Nian

(Institute of Metal Research , Chinese Academy of Sciences , Shenyang 110016 , China)

(Received 22 October 2003 ; revised manuscript received 4 March 2004)

Abstract

In order to reflect the characteristic of sharp interface during the dendritic growth process , cellular automaton method is used to simulate the dendrite evolution. In this method the different physical properties in both solid and liquid phases are adopted to reflect the different heat-transfer rate. The simulated results show that there is solute micro – segregation between the two primary dendritic arms. In addition ,the solute concentration gradient and temperature ahead of the solid/liquid interface decrease gradually with increasing solidification time. Comparing the simulated radius of the dendritic tip with the theoretical radius , we obtain that the simulated results fit the theoretical radius well , and the deviation is less than $1\mu\text{m}$.

Keywords : dendritic growth , solidification , simulation , microsegregation

PACC : 6150J , 6185 , 6610C , 8310F

^{*} Project supported by the National High Technology Development Program of China (Grant No.2001AA339030).

[†]E-mail address : qli@imr.ac.cn.