

等温凝固多晶粒生长相场法模拟^{*}

路 阳 王 帆[†] 朱昌盛 王智平

(兰州理工大学 甘肃省有色金属新材料省部共建国家重点实验室, 兰州 730050)

(2005 年 6 月 21 日收到, 2005 年 8 月 7 日收到修改稿)

采用 Kim 模型, 利用耦合溶质场的相场模型对 Al-2-mole-Cu 合金等温凝固过程中多晶粒相互影响下枝晶的生长过程进行数值模拟, 为了提高计算效率, 采用差分去实现宏微观场之间的耦合, 研究了不同过冷度对多晶粒枝晶形貌和溶质分布的影响, 结果表明, 成分过冷对枝晶生长速度和溶质分配有着重大的影响, 溶质元素 Cu 在固液界面前沿重新分布, 结果导致实际热过冷减小, 进而影响枝晶的生长和溶质向外层的扩散, 致使相互接触的枝晶产生萎缩而其余没有受到抑制的枝晶生长方向产生择优现象.

关键词: 相场法, 模拟, 择优生长, 等温凝固, 二元合金

PACC: 7115Q, 6480G

1. 引 言

20 世纪 80 年代, Collins^[1]和 Caginalp^[2]等提出了最早的相场模型之后, Caginalp^[3], Fife 和 Gil^[4]等对相场模型进行了大量的数学分析, 并最早将各向异性引入相场模型. 1999 年, Kim 和 Suzuki^[5]等, Lee 和 Suzuki^[6]分别模拟了等温条件下不同成分的 Al-Si, Fe-C 合金的凝固微观组织, 得到的凝固组织特征如尖端半径、尖端速率等并与经典理论值进行了对比, 取得良好的效果.

目前国内刘小刚^[7], 龙文元^[8,9], 于艳梅^[10], 赵代平^[11]等人对二元合金的凝固过程进行了模拟, 但都是在一个等轴晶粒的基础上对溶质偏析和枝晶形貌等特征进行了研究. 然而针对金属凝固过程中三维枝晶生长模拟和二维多晶粒生长模拟研究较少, 主要原因是: 1) 微观划分需要较大的存储空间和计算总时间; 2) 相场的求解还没有找到一个超高效率的方法. 本文采用的是 Kim 等人在 WBM 模型基础上改进得到的 KKS 模型^[9-11], 模拟了多个晶粒同时生长时的枝晶形貌和溶质分布.

2. 相场模型^[12-14]

2.1. 相场控制方程

对实际凝固过程而言, 多晶粒生长的模拟是比较合理的, 然而多晶粒的生长需要多个相场方程去控制, 每个晶粒都在一个单独相场方程控制下的结果就是: 计算变量将增加数倍, 计算空间和时间要增加几十甚至百倍, 对目前普通的计算工具和算法而言难以实现. 本文没有采用多相场方程, 而是利用单个相场方程去控制多晶粒的生长, 虽然单相场控制多晶粒生长有一定缺陷, 尤其是在枝晶相互碰撞时偏差可能偏大, 但对枝晶未接触的区域计算是没有影响的. 同时在本文中, 多晶粒生长的最优方向是一致的, 这与实际凝固过程中随机取向有一定的差别, 但这不会影响到问题的研究.

自由能密度定义为固相和液相的自由能密度分别乘以固相和液相的分数, 再加上剩余自由能的和, 即可表示为

$$f(\phi, c) = h(\phi)f^s + (1 - h(\phi))f^l + wg(\phi), \quad (1)$$

^{*} 甘肃省科技攻关项目(GS012-A52-071)及甘肃省重大成果科技转化项目(2GS044-A52-001-25)资助的课题.

[†] E-mail: wangfan-1980@163.com

式中 $h(\phi)$ 为势函数, $g(\phi)$ 为剩余自由能函数, 在本文中取 $h(\phi) = \phi^3(10 - 15\phi + 6\phi^2)$, $g(\phi) = \phi^2(1 - \phi)$, W 为相场参数, f^s, f^l 分别为固、液相的自由能, 其表示为

$$f^s = c_s f_{sB}(T) + (1 - c_s) f_{sA}^*(T), \quad (2)$$

$$f^l = c_l f_{lB}(T) + (1 - c_l) f_{lA}^*(T), \quad (3)$$

则相场方程可表示为

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M [\varepsilon^2(\theta) \nabla^2 \phi + h(\phi) (f^l - f^s) - wg(\phi)], \quad (4)$$

式中 M 为相场参数, $\varepsilon(\theta)$ 为与界面能有关的参数, 表示为

$$\varepsilon(\theta) = \varepsilon_0(1 + v \cos(k\theta)), \quad (5)$$

式中 k 为各向异性的模数, 通常取 4, v 为各向异性强度系数, θ 为界面与优先生长方向间的夹角, 即 ϕ 在 x, y 轴方向的斜率 $\tan\theta = \phi_x / \phi_y$.

2.2. 溶质场扩散方程

在合金的模拟中, 还需要同时耦合溶质扩散方程, 用自由能密度表示为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{D(\phi)}{f_c} \nabla f_c \right), \quad (6)$$

式中 $D(\phi)$ 为溶质扩散系数, f_c, f_{fc} 为自由能密度 f 对浓度 c 的一阶、二阶偏微分.

在界面区域, 溶质浓度 c 为固相与液相质量分数之和. 另外在两相平衡时, 界面区域中任意点的固、液相的化学势相等, 即

$$c = h(\phi) c_s + (1 - h(\phi)) c_l, \quad (7)$$

$$\mu_s c_s(x, t) = \mu_l c_l(x, t), \quad (8)$$

式中 μ_s, μ_l 分别为固相和液相的化学势.

3. 计算条件的确定

3.1. 相场参数的确定

模型中用到的其他几个相场参数值由下式确定:

$$M^{-1} = \frac{\varepsilon^2}{\sigma} \left(\frac{RT}{V_m} \frac{1 - k^e}{m^e} \beta + \frac{\varepsilon}{D_1 \sqrt{2w}} \xi(c_s^e, c_l^e) \right) \quad (9)$$

$$w = \frac{6.6\sigma}{\lambda}, \quad (10)$$

$$\xi(c_s^e, c_l^e) = \frac{RT}{V_m} (c_l^e - c_s^e)$$

$$\times \int_0^1 \frac{h(\phi) [1 - h(\phi)]}{[1 - h(\phi)] c_l^e (1 - c_l^e) + h(\phi) c_s^e (1 - c_s^e)}$$

$$\times \frac{d\phi}{h(1 - \phi)}, \quad (11)$$

$$\varepsilon_0 = \sqrt{\frac{6\lambda\sigma}{2.2}}. \quad (12)$$

3.2. 扰动

为了模拟实际凝固过程中界面处的随机起伏, 计算时需要加入一种扰动, 本文在相场方程中加入扰动为

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\partial \phi}{\partial t} + 16g(\phi) \chi \bar{\omega}, \quad (13)$$

式中 χ 为 -1 到 1 之间的随机数, $\bar{\omega}$ 为与时间有关的相扰动强度因子.

3.3. 材料物性参数

本文模拟的是 Al-2-mole-Cu 合金, 因为其具有综合的耐蚀耐磨性能^[15-17], 但铸造性能较差, 为改善其力学性能、提高铸件成品率, 本人模拟了该合金凝固过程中的枝晶生长, 其物性参数如表 1.

表 1 材料物性参数

物性参数	Al-2-mole-Cu
界面能 σ (J/m)	0.093
熔点温度 T_m /K	933.3
凝固潜热 L (KJ/kg)	389.0
热导率 k (W/mK)	192.6
平衡常数 k^e	0.14
液相溶质扩散系数 D_l (m ² /s)	3.0×10^{-9}
固相溶质扩散系数 D_s (m ² /s)	3.0×10^{-13}
液相线斜率 m^e	620

3.4. 初始条件和边界条件

假设初始晶核半径为 R , 则

$$x^2 + y^2 \leq R^2 \text{ 时, } \phi = 0, T = T_m - \Delta T,$$

$$x^2 + y^2 > R^2 \text{ 时, } \phi = 1, T = T_m - \Delta T,$$

式中 x, y 分别是横坐标和纵坐标, T 为浇注温度.

在计算区域的边界上, ϕ, c 采用 Zero-Neumann 边界条件.

3.5. 数值计算方法

本文采用显式有限差分法同时求解方程 (4) 和 (6). 计算时间步长受浓度场计算约束, 即 $\Delta t < \Delta x^2 / (4D_1)$, D_1 为液相中的溶质扩散系数, 因此在本文计算中选择 $\Delta t = \Delta x^2 / (5D_1)$. 枝晶生长主轴对应着直

角坐标系 x 轴和 y 轴,相场和溶质场的计算网格数因初始晶核数目而变化,网格尺寸为 $1 \times 10^{-8} \text{m}$,初生晶核设为 $R = 10$ 的球.

4. 模拟计算及结果分析

4.1. 溶质偏析对枝晶生长的影响

随着枝晶的长大,固液界面逐渐向液相推移,由于溶质的再分配致使 Cu 从固相中析出而富集于固液界面前沿. 图 1 为 $t = 30000\Delta t, \nu = 0.05, \Delta T = 33.3$ 两晶粒同时生长时的枝晶形貌和溶质场分布. 从图 1 可以看到在两枝晶相互接触的区域,其枝晶的生长明显受到了抑制,而在其余三个方向则出现了择优生长,这主要是由于两枝晶相互接触的界面上,从两边析出的溶质富集造成了实际过冷度的减

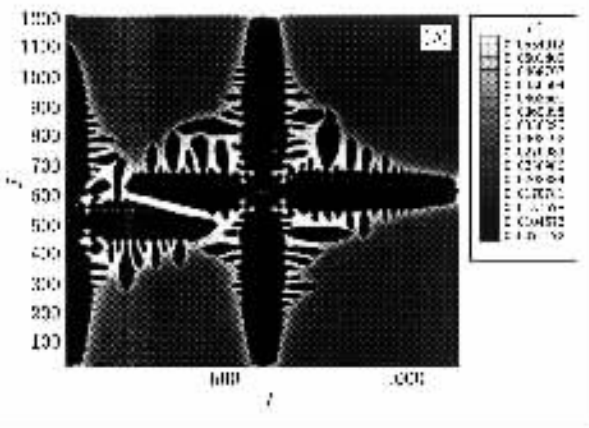
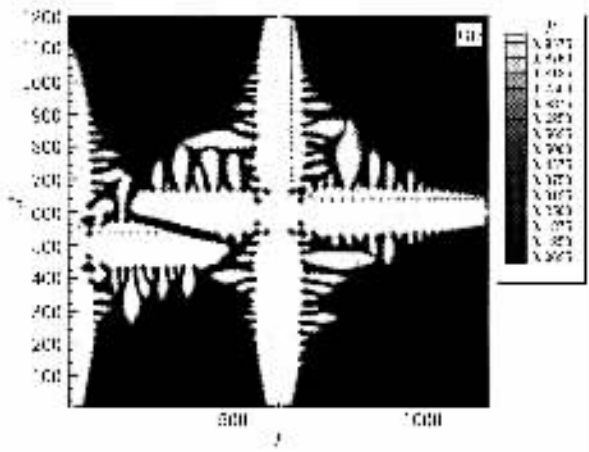


图 1 双枝晶生长相互影响下的枝晶形貌和溶质分布 (a)相场 (b)溶质场

小从而抑制了枝晶的生长速度;枝晶中心 Cu 的浓度最低是由于凝固过程枝晶尖端曲率效应引起过冷而产生的,在两枝晶相互夹击区域的溶质浓度最高,

这是因为凝固析出的溶质,其在液相的扩散速度小于枝晶的生长速度致使凝固析出的 Cu 不能充分扩散到液相中,同时随着两端二次枝晶的生长造成溶质向外扩散通道的长而弯曲,这进一步加剧了该区域溶质浓度的升高.

4.2. 过冷度对晶间偏析和生长速度的影响

在枝晶的生长过程中,成分过冷对其生长速度和溶质分配有着重大影响,而成分过冷的大小和过冷区的宽窄决定于界面前沿的温度梯度和溶质固液分配曲线 (T_x). 当凝固温度较低而形成较大热过冷时,枝晶可以快速伸入过冷区而具有较大的生长速度,但同时,枝晶的生长是液相中原子向固液界面陆续堆砌的过程,低的温度会影响到原子的扩散速度进而影响枝晶的生长速度^[18],所以对于凝固温度的选择应综合考虑.

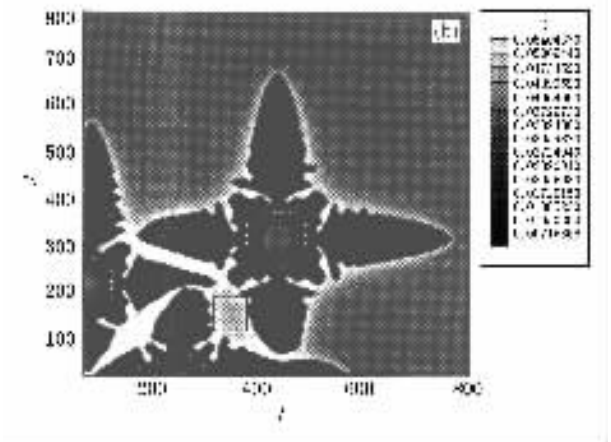
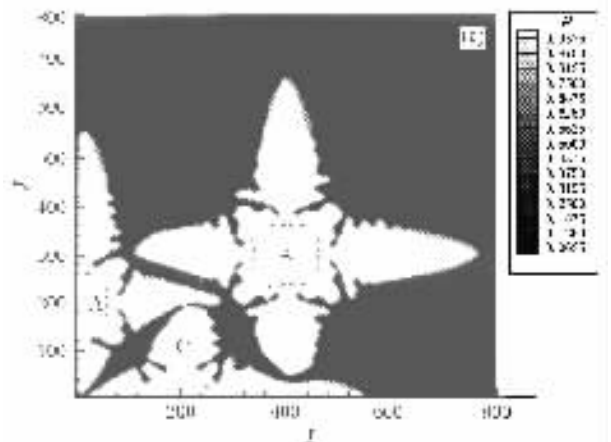


图 2 三晶粒生长影响下的枝晶形貌和溶质场分布 (a)相场, (b)溶质场

图 2 所示为三晶核枝晶形貌和溶质分布,此时 $t = 30000\Delta t, \nu = 0.03, \Delta T = 33.3\text{K}$. 从图 2(a) 可以明

显看到成分过冷对枝晶生长的影响, A 的右侧枝正好处于枝晶 B 和 C 的夹击之中, 由于枝晶 B, C 的共同作用致使其夹击区域的溶质浓度过高, 其对 A 右侧枝的生长形成一个较小的成分过冷, 进而影响了该枝晶的生长速度, 枝晶 A 明显的要比枝晶 B, C 瘦小一些.

图 2(b) 为 (a) 对应的溶质场分布, 在枝晶相互干涉区域其溶质浓度最大 (亮度最大), 跟踪枝晶 B, C 所夹区域 ($240 < I < 360, J = 140$) 其溶质浓度分布曲线如图 3 所示, 此时 $\Delta T = 23.3\text{K}$ 和 $\Delta T = 43.3\text{K}$. 从曲线可以明显看出, 当温度为 910K 时, 在该区域的溶质扩散曲线斜率较 890K 小, 这是因为温度的升高加快了溶质原子的热运动速度进而加快了溶质的扩散速度, 所以在该区域的溶质 910K 时较 890K 时分布均匀一些. 从图 3 还可以得到, 890K 和 910K 时由于枝晶处于生长初期, 其生长速度差别不是太大, 从该图中难以分辨, 有待于进一步研究.

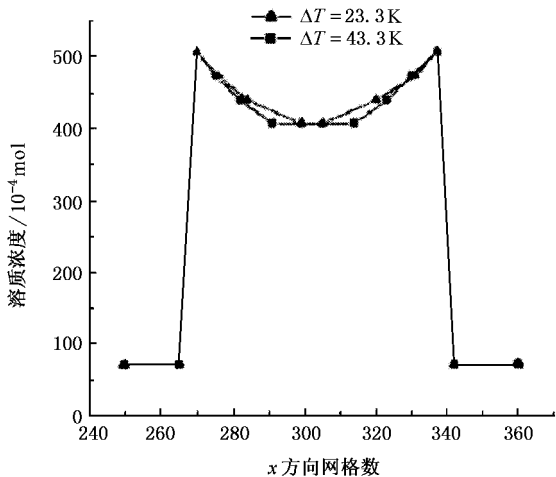
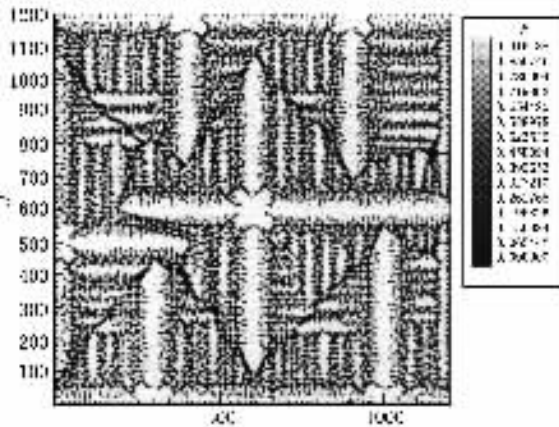
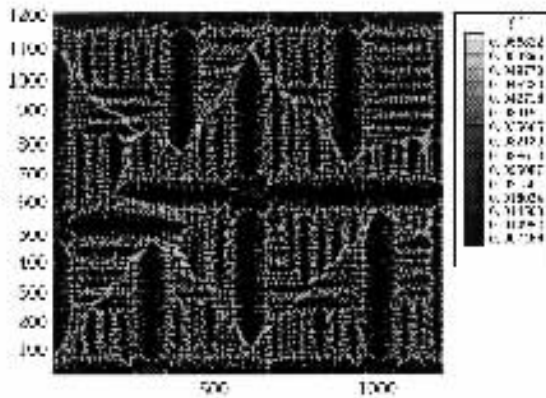


图 3 不同温度下的溶质分布曲线

图 4 所示为 $t = 10000\Delta t, \nu = 0.03, \Delta T = 33.3\text{K}$ 时多晶粒生长的枝晶形貌和溶质场分布. 由图 4(a) 可以看出, 此时金属几乎全部凝固. 由于等轴晶 B 的生长速度小于 A 的右侧枝生长速度, 因而其生长没有对晶粒 A 右主轴方向产生明显抑制, 故 A 右侧枝相对于其他方向出现明显的择优生长. 随着二次和三次枝晶的生长, 溶质的向外扩散受到明显抑制, 在枝晶的根部出现大量集中 (图 4(b) 可以看出), 枝晶的生长受到强烈的抑制致使在其根部出现明显的颈缩甚至重熔脱落现象, 这与经典理论关于枝晶生长过程相一致.



(a) 相场



(b) 溶质场

图 4 多晶粒生长的相形貌和溶质分布

5. 结 论

1) Kim 模型能够准确而逼真地模拟凝固过程中多晶粒生长时的枝晶形貌和溶质分布, 且与经典理论吻合良好.

2) 在枝晶生长过程中, 成分过冷对其生长速度和溶质分配有着重大的影响, 溶质元素 Cu 在固液界面前沿重新分布, 导致界面前沿液态合金熔点降低, 从而使实际过冷度减小. Cu 含量越高, 溶质偏析越严重, 实际过冷度越小, 因此生长速度就越慢. 由于枝晶相互接触区域和枝晶根部溶质扩散均匀性条件最差, 故其溶质偏析程度最严重, 该处的生长受到强烈的抑制, 出现枝晶的颈缩和重熔脱落现象.

3) 过冷度对晶间溶质的再分配影响很大, 过冷度的减小加快了溶质原子的热运动速度进而加快了溶质的扩散速度, 因而在高温凝固时溶质分布均匀

一些.

4)多晶粒同时生长时,枝晶的各级次分枝根部在干枝生长时,侧枝的生长抑制了相互接触主枝晶和侧枝自身的进一步生长,致使其他没有受到抑制

的枝晶出现方向上的择优现象.

5)本文只研究了温度对多晶粒生长时枝晶形貌和溶质分布的影响,对于其他参数的影响有待于进一步研究.

- [1] Collins J B , Levin H 1985 *Phys. Rev B* **31** 6119
- [2] Caginalp G , Fife P C 1988 *SIAM J. Apply Mathematics* **48** 506
- [3] Caginalp G Stefan , Hele Shaw 1989 *Phys. Rev A* **39** 5887
- [4] Fife P C , Gill G S 1991 *Phys. Rev A* **43** 843
- [5] Kim S G , Kim W T , Suzuki T 1998 *Phys. Rev E* **58** 3316
- [6] Lee J S and Suzuki T 1999 *ISIJ Int* **39** 246
- [7] Liu X G , Wang C Z , Mo C L 2002 *Foundary* **6** 31(in Chinese) [刘小刚、王承志、莫春立 2002 铸造 **6** 31]
- [8] Long W Y , Cai Q Z , Chen L L *et al* 2003 *Foundry* **52** 695(in chinese) [龙文元、蔡启舟、陈立亮 等 2003 铸造 **52** 695]
- [9] Long W Y , Cai Q Z , Chen L L *et al* 2005 *Acta Phys. Sin* **54** 256 (in Chinese) [龙文元、蔡启舟、陈立亮 等 2005 物理学报 **54** 256]
- [10] Yu Y M , Yang G C , Zhao D W , Karma A , Beckermann C 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2423 (in Chinese) [于艳梅、杨根仓、赵达文、Karma A , Beckermann C 2001 物理学报 **50** 2423]
- [11] Zhao D P , Jing T , Liu B C 2003 *Acta Phys. Sin* **52** 1737(in Chinese) [赵代平、荆涛、柳百成 2003 物理学报 **52** 1737]
- [12] Toshio Suzukia , Machiko Ode , Seong Gyoon Kim and Won Tae Kim 2002 *J. Cryst. Growth* **237** - **239** 125
- [13] Seong Gyoon Kim , Won Tae Kim , Toshio Suzuki 1999 *Phys Rev E* **60** 7186
- [14] Seong Gyoon Kim , Won Tae Kim , Toshio Suzuki 1998 *Phys. Rev E* **58** 3316
- [15] Li W S , Lu Y , Wang Z P *et al* 2005 *Mater. Rev.* **5** 42(in Chinese) [李文生、路阳、王智平等 2005 材料导报 **5** 42]
- [16] Li W S , Lu Y , Wang Z P *et al* 2002 *Nonferrous Metals* **54** 30 [李文生、路阳、王智平等 2002 有色金属 **54** 30]
- [17] Li W S , Wang Z P , Lu Y 2002 *J Gansu University of Technology* **28** 26 [李文生、王智平、路阳 2002 甘肃工业大学学报 **28** 26]
- [18] Li Q C 1980 *Basic Theory of Casting Forming* (Haerbin : Press of Haerbin Institute of Technology) p84(in chinese) [李庆春 1980 铸件形成理论基础 哈尔滨 : 哈尔滨工业大学出版社 第 84 页]

Simulation of multiple grains for isothermal solidification of binary alloy using phase-field model

Lu Yang Wang Fan[†] Zhu Chang-Sheng Wang Zhi-Ping

(*State Key Lab of Gansu New Nonferrous Metal Materials , Lanzhou University of Technology , Lanzhou 730050 , China*)

(Received 21 June 2005 ; revised manuscript received 7 August 2005)

Abstract

The phase-field model based on Kim model which couples the solute field is used to simulate microstructural dendrite growth of multiple grains for Al-2-mole-Cu alloy. In order to improve the efficiency of calculation , an interpolative method is used to achieve the coupling of the macro field with the micro field. The influence of different undercooling on shapes of dendrites and distribution of solute is studied. The result shows that the re-distribution of solute can decrease the melting point of the alloy , and reduce the practical undercooling , so the constitutional supercooling can influence the growth rate and solute distribution of dendrites by decreasing the freezing point evidently , and at the same time results in the cease of growth for both collided dendrites and preferred growth in directions of unhindered grains .

Keywords : phase-field , simulation , preferred growth , isothermal solidification , binary alloy

PACC : 7115Q , 6480G

* Project supported by the Project Tackling Key Problems in Sciences and Technology of Gansu Province(Grant No. GS012-A52-071) and the Great Achievement Transforming Project of Science and Technology of Gansu Province , China(Grant No. 2GS044-A52-001-25).

[†] E-mail : wangfan-1980@163.com