

# 相场法模拟弹性场对沉淀相变组织演化 及相平衡成分的影响<sup>\*</sup>

张玉祥 王锦程<sup>†</sup> 杨根仓 周尧和

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2005 年 7 月 8 日收到, 2005 年 7 月 28 日收到修改稿)

采用相场法模拟沉淀组织在不均匀共格本征弹性场及外加约束弹性应变作用下的演化历程, 探讨了不均匀共格本征弹性场及外加约束弹性应变对共格沉淀组织演化的影响规律, 并分析了弹性场在沉淀相变中对基体与沉淀相的平衡成分的影响.

关键词: 相场法, 沉淀组织, 弹性场, 相平衡成分

PACC: 6400, 6470K, 8130M

## 1. 引 言

在金属固态相变过程中, 新相和母相比容的不同将导致其体积发生变化, 同时新相又要受到周围母相的约束而不能自由胀缩, 因此新相和母相之间必将产生一定的弹性场<sup>[1]</sup>. 另外, 固态相变初期, 新相和母相之间将保持共格关系, 但当界面处两相的原子间距差别较大, 如界面要保持其共格关系, 原子就要产生位移, 这样由于界面处原子的不匹配也将产生弹性场. 更重要的是作为结构材料在服役过程中, 材料还将受到外加弹性场的作用. 弹性场的存在不仅导致沉淀相在尺寸、形态、取向以及空间相关性等方面呈现出复杂性和多样性, 而且在相析出与粗化动力学上, 也与传统的 LSW (Lifshitz-Slyozov-Wagner) 粗化理论有许多差异. 因此, 研究弹性场作用下沉淀组织演化的规律及其对沉淀相变的相平衡成分的影响, 对沉淀相变机理的深入理解以及沉淀强韧化材料设计等均具有重要意义.

关于弹性场作用下的沉淀组织演化, 已有许多学者开展了这方面的工作, 特别是从实验角度进行了较多的研究<sup>[2-4]</sup>. 在数值模拟方面, A. G. Khachaturyan 提出的在傅里叶空间中求解两相弹性体弹性能的方法, 为数值模拟研究弹性场作用下的

复杂形状相析出组织演化过程提供了坚实基础, 同时也极大地推动了弹性场作用下沉淀组织演化的数值模拟研究进程. 目前主要代表性工作有: 1) 尖锐界面模型 (sharp interface model)<sup>[5-7]</sup>, 该类模型优点在于比较简洁, 计算速度较快, 但跟踪界面困难, 难以处理复杂界面演化问题; 2) 离散原子方法 (discrete atom method)<sup>[8,9]</sup>, 这种方法可以处理复杂弹性不均匀和复杂的形态演化问题, 但是对多个颗粒的处理非常困难; 3) 弥散界面模型 (diffuse interface model), 该类模型认为界面两侧的序参量的变化是连续的, 主要包括微观相场模型和连续相场模型, 特别是后者, 现在广泛被采用.

Li 等<sup>[10]</sup>研究了镍基合金的组织演化及  $\gamma'$  粒子的分裂行为, 并且研究了沉淀的体积分数及界面能等因素的作用. Hu 等<sup>[11]</sup>提出了迭代法以求解弹性平衡方程, 并研究了在无外加载荷作用时弹性场对沉淀组织形貌的影响. 而 Zhu 等<sup>[12]</sup>采用共轭梯度法求解弹性平衡方程, 进一步考虑了外加应变场的作用. 但这些研究或没有考虑剪切应变的作用, 或没有研究多个颗粒的情形, 仍缺乏相对系统的研究. 而且, 大多数研究主要是针对弹性场对组织形貌的影响, 而对弹性场与沉淀相变的相平衡成分间的相关性缺乏系统和深入的研究. 因此, 本文将采用相场法系统研究在外加拉伸应变及剪应变作用下单颗

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号 50401013)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

粒沉淀和多颗粒沉淀的组织形貌演化规律,并分析弹性场与沉淀相变的相平衡成分的相关性,以期更加深入地理解弹性场对沉淀相变的影响.

## 2. 模 型

微观组织随时间的演化可通过求解 Cahn-Hilliard 扩散方程<sup>[13]</sup>获得

$$\frac{\partial c}{\partial t} = M \nabla^2 \frac{\delta F}{\delta c}, \quad (1)$$

其中  $c$  为成分场,  $t$  为时间,  $M$  为迁移率,  $F$  为系统总的自由能,在考虑弹性场作用时,系统总的自由能可以表示为

$$F = \int_V \left[ f(c) + E_{el} + \frac{1}{2} \kappa (\nabla c)^2 \right] dV, \quad (2)$$

其中  $f(c)$  为局部化学自由能密度,本文中取双阱形式  $f(c) = -(c - 0.5)^2 + 2.5(c - 0.5)^4$ ,  $\kappa$  为梯度能系数,  $E_{el}$  为弹性应变能密度,即

$$E_{el} = \frac{1}{2} \sigma_{ij}^{el} \epsilon_{kl}^{el} = \frac{1}{2} \lambda_{ijkl}(\mathbf{r}) \epsilon_{ij}^{el}(\mathbf{r}) \epsilon_{kl}^{el}(\mathbf{r}), \quad (3)$$

其中  $\lambda_{ijkl}$  为体系的局部弹性模量张量,  $\sigma_{ij}^{el}$  为弹性应力,  $\epsilon_{kl}^{el}$  为弹性应变,即

$$\epsilon_{kl}^{el}(\mathbf{r}) = \bar{\epsilon}_{kl} - \epsilon_0 \delta(\mathbf{r}) \delta_{kl} + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k}{\partial r_l} + \frac{\partial u_l}{\partial r_k} \right), \quad (4)$$

其中  $\bar{\epsilon}_{kl}$  为总应变中均匀应变部分,  $\delta(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r}) - c_0$ ,  $\epsilon_0 = (1/a) \chi da/dc$ ,  $a$  为无应力时的晶格常数,  $c_0$  为平均成分,  $\delta_{kl}$  为 Kronecker-Delta 函数,  $u$  为位移,其解可通过求解平衡方程(5)得到

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^{el}}{\partial r_j} = 0, \quad (5)$$

所以,在考虑弹性应变能时, Cahn-Hilliard 方程可写为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = M \nabla^2 \left[ \frac{\partial f}{\partial c} + \frac{\partial E_{el}}{\partial c} - \kappa \nabla^2 c \right]. \quad (6)$$

## 3. 计算条件

采用方形计算区域,单个颗粒计算区域网格大小为  $128 \times 128$ ,多颗粒沉淀组织计算区域为  $256 \times 256$ . 各参量均已进行无量纲化,网格尺寸  $\Delta x = \Delta y = 1.0$ ,时间步长  $\Delta t = 0.2$ ,梯度能系数  $\kappa = 1.5$ ,迁移率  $M = 1.0$ ,  $\epsilon_0 = 0.05$ . 对于立方系晶体仅有 3 个独立的弹性常数,即  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  和  $C_{44}$ ,定义体模量  $B =$

$C_{11} + C_{12}$ , 剪切模量  $G = C_{44}$ , 剪切模量比  $k = C_{44}^p / C_{44}^m$ ,  $C_{44}^m$ ,  $C_{44}^p$ ,  $C_{44}^m$  分别为沉淀相和基体相的剪切模量, Zener 各向异性系数  $A = 2C_{44} / (C_{11} - C_{12})$ . 固定  $B = 500$ ,  $A = 2$ , 研究不同  $k$  值时系统组织演化情况,因  $A$  值大于 1,沉淀和基体的弹性软方向均为  $[10]$  和  $[01]$  方向. 边界条件为周期性边界条件. 对弹性平衡方程采用迭代法求解<sup>[11]</sup>,对 Cahn-Hilliard 方程采用半隐格式的傅里叶谱方法求解<sup>[12,14]</sup>.

对于单颗粒沉淀,研究剪切模量比  $k = 0.3$  和 3.6 两种情况,  $k < 1$  时沉淀为软沉淀,  $k > 1$  时为硬沉淀. 初始条件:基体的成分设为 0.053,沉淀相成分为 0.947 半径为  $R = 20$  的圆,此时基体与沉淀相的成分为无弹性场时的平衡成分,对于多颗粒沉淀组织仅考虑弹性硬沉淀  $k = 3.6$  的情况,其初始条件:成分为 0.5 过饱和固溶体,采用噪声形核.

## 4. 结果与讨论

### 4.1. 组织演化

#### 4.1.1. 单颗粒沉淀组织

为了更好地确定沉淀组织在弹性场作用下的组织演化及其对基体与沉淀相的平衡成分的影响,同时避免引入颗粒间的相互作用对沉淀颗粒平衡形状以及相平衡成分产生影响,首先系统研究单个颗粒沉淀组织演化情况.

图 1 给出了当剪切模量比  $k < 1$ ,即沉淀弹性意义上比基体软时,单个沉淀颗粒在剪切应变作用下组织及系统各种能量的演化过程,其中  $E_{elastic}$ ,  $E_{chemical}$ ,  $E_{interfacial}$  和  $E_{total}$  分别为系统弹性应变能、化学自由能、界面能和总能量. 由于各种能量间绝对值相差较大(右侧小图),为了表明其变化过程,将各能量进行归一化. 由图可见,系统的演化是一自由能降低的过程,其主要控制因素是系统的弹性能. 对于系统的界面能,由于沉淀相体积分数较小,系统的界面能也较小,其变化规律是开始减小,然后增大,最后趋于稳定. 其原因是开始时由于给定的初始条件是一尖锐界面的沉淀相颗粒,所以,系统首先进行界面的弥散,此时系统的界面能有所降低,然后在弹性场的作用下,沉淀颗粒的形状将发生变化,最后阶段颗粒形状变化不大,其界面能也逐渐趋于稳定. 系统化学自由能增加的原因,是由于系统初始条件的两相成分是无弹性场时的平衡成分,即此时其化

学自由能是最低的,在弹性场的作用下,沉淀及相应基体的平衡成分发生变化,其平衡成分发生偏离,这必将导致系统的化学自由能发生变化,也就是从最低点会有所增大。

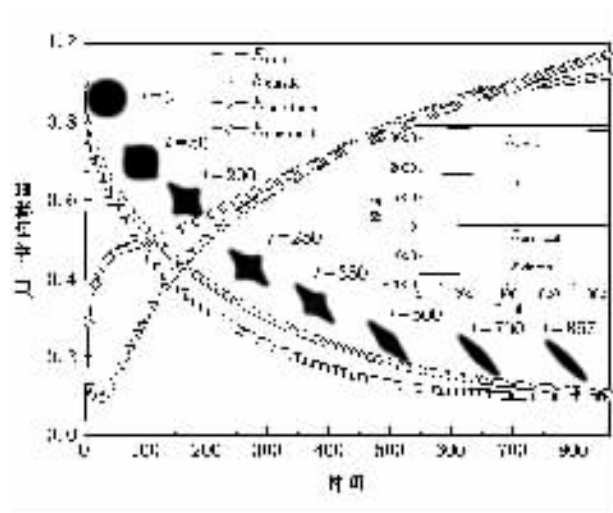


图1 剪切应变( $\epsilon_{12} = 0.01$ )作用下单颗粒软沉淀( $k = 0.3$ )组织演化及系统中弹性能、界面能、化学自由能以及系统总能量的变化情况

系统在一恒值外加应变的作用下,系统的弹性应变能包括两个方面:一是由于界面处原子错配而引起的本征应变弹性能,这种弹性能是立方各向异性的,因此这种弹性能会使颗粒向方形的形态演化。二是外加的弹性应变场引起的,这种弹性能会因颗粒和基体弹性模量以及错配度等的不同而改变。在剪切应变作用时( $k < 1$ 及 $\epsilon_0 = 0.05$ ),外加剪切应变所引起的弹性场将导致颗粒在 $[1\bar{1}]$ 方向生长。如图1所示,随系统演化的进行,系统的总能量不断降低,初始形状为 $R = 20$ 的圆形软沉淀在 $[1\bar{1}]$ 方向逐渐出现尖角,由于不断向 $[1\bar{1}]$ 方向延伸 $[11]$ 方向也逐渐出现尖角,由于外加剪应变较大,外加应变的弹性能在演化中逐渐占据主导地位,在随时间的演化过程中 $[11]$ 方向的尖角逐渐消失,而沿 $[1\bar{1}]$ 方向逐

渐变长,最后形成板条状,该沉淀组织逐渐达到平衡状态。

对于其他的加载方式(无外加应变作用、 $\epsilon_{11} = 0.01$ 以及 $\epsilon_{22} = 0.01$ )颗粒均会演化成不同的形貌,图2为初始形貌为 $R = 20$ 的圆形单颗粒软沉淀在不同加载条件下的形貌( $t = 1000$ )。在本征弹性场但无外加应变场的作用时,如图2(a),演化为具有凹界面的形状。在外加拉应变沿 $[10]$ 方向作用时,如图2(b),单颗粒软沉淀组织沿 $[10]$ 方向延伸,呈板条状。当外加拉应变方向相反时(沿 $[01]$ 方向),最终的组织排列方向亦相反(沿 $[0\bar{1}]$ 方向),如图2(c)。

当剪切模量比 $k > 1$ ,即沉淀颗粒在弹性意义上比基体硬时,沉淀颗粒组织形貌与 $k < 1$ 时有较大差别,初始形状为 $R = 20$ 的圆形单颗粒硬沉淀在不同加载条件下演化为不同的形貌( $t = 1000$ ),如图3所示,形貌差异较大。沉淀颗粒在本征弹性场但无外加应变的作用下,由于立方弹性各向异性,沉淀形状为有圆角的方形。在拉应变的作用下,外加应变克服了立方弹性各向异性,在垂直外加应变的方向上颗粒变长,且随着外加拉应变的增大,颗粒在垂直外加拉应变的方向上逐渐变长。在外加剪切应变作用时,弹性硬颗粒演化为沿 $[11]$ 方向延伸的形貌。与弹性软颗粒(图2(d))相比,由于二者的弹性不均匀程度不同,导致了二者的延伸方向的不同。

#### 4.1.2. 多颗粒沉淀组织

沉淀相变中沉淀颗粒之间存在相互作用,沉淀颗粒之间的相互影响不可忽略,为此必须讨论多个颗粒的情形。

图4所示为 $k = 3.6$ 时在外加剪应变作用下系统组织的演化过程。剪切应变克服了立方弹性各向异性,沉淀在初期为沿 $[11]$ 方向排列的斑纹状组织,在剪切模量比较大的情况下,由于弹性不均匀的存在,沉淀组织由相互联结的斑纹状组织分裂为相互

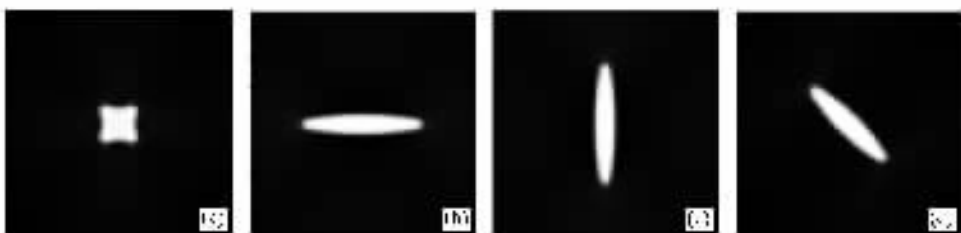


图2 单颗粒软沉淀( $k = 0.3$ )在不同加载条件下的形貌( $t = 1000$ ) (a)无外加应变作用,(b) $\epsilon_{11} = 0.01$  (c) $\epsilon_{22} = 0.01$  ,(d) $\epsilon_{12} = 0.01$

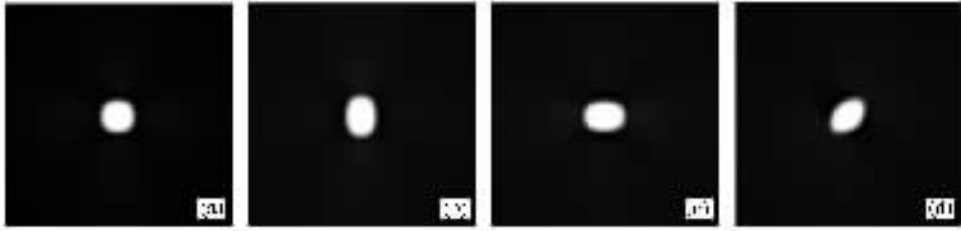


图3 单颗粒硬沉淀( $k = 3.6$ )在不同加载条件下的形貌( $t = 1000$ ) (a)无外加应变作用, (b) $\epsilon_{11} = 0.01$  (c) $\epsilon_{22} = 0.01$  (d) $\epsilon_{12} = 0.01$

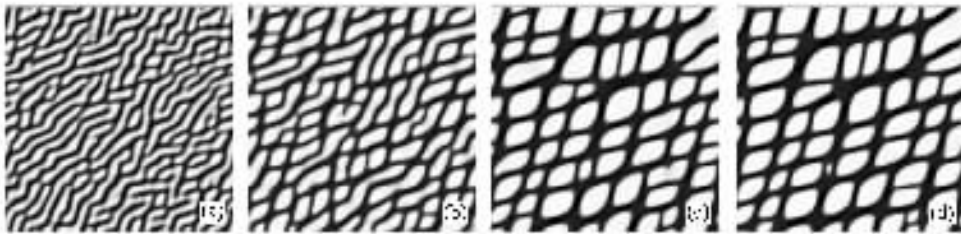


图4 剪切应变( $\epsilon_{12} = 0.015$ )作用下沉淀组织的演化历程( $k = 3.6$ ) (a) $t = 50$ , (b) $t = 250$ , (c) $t = 500$ , (d) $t = 1500$

分离的组织,但由于剪切应变的作用破坏了原来的立方弹性各向异性,这种组织不是带有圆角的方形,这种硬沉淀组织演化为沿 $[11]$ 方向延伸的颗粒组织,如图4(d),形貌类似于单颗粒硬沉淀( $k = 3.6$ )在剪切应变作用下的形貌(如图3(d)),不再沿无外加应变作用时的弹性软方向排列,这种互相分离的沉淀颗粒,在随后的演化中表现为粗化行为,小颗粒被吸收或合并,组织不断粗大,从而减小界面能。

图5为 $k = 3.6$ 时,在不同加载条件下 $t = 1500$ 时的沉淀组织形貌。仅考虑本征弹性场的作用,不考虑外加应变时,由于弹性不均匀的存在及立方弹性各向异性,沉淀组织由相互联结的斑纹组织演化为互相分离的带有圆角的方形颗粒组织,如图5(a)这种硬颗粒由周围的软的基体相包裹,并沿弹性软方向排列以松弛弹性应变能。在单向外加拉应

变的作用下,若外加应变大到足以克服立方弹性各向异性时,沉淀组织表现为定向排列行为,在随时间的演化中,出现定向粗化现象,小的板条状沉淀逐渐被大的板条状沉淀组织所吸收或合并掉,而大的板条状沉淀组织变得更加粗大。外加应变方向会影响沉淀组织排列的方向,沉淀组织排列的方向与外加应变方向、错配度的正负及弹性不均匀程度等因素有关<sup>[12]</sup>。在本文条件下,若在 $[10]$ 方向施加拉应变,沉淀组织沿 $[01]$ 方向排列,如图5(b),与外加应变方向垂直。而若在 $[01]$ 方向施加拉应变时,沉淀组织沿 $[10]$ 方向排列,如图5(c),沉淀组织排列方向仍和外加应变方向垂直。

#### 4.2. 弹性场对基体与沉淀相的平衡成分的影响

弹性场的存在不仅对沉淀相变的沉淀组织形貌

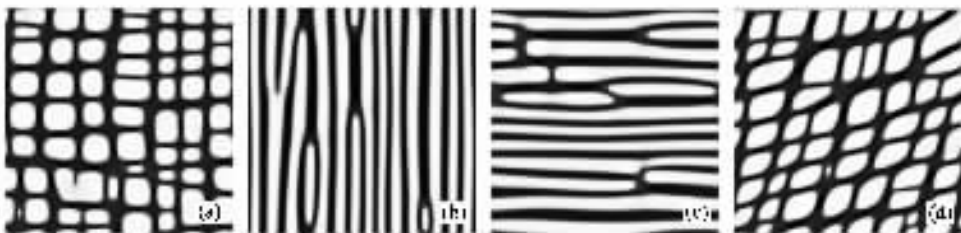


图5 不同加载条件下沉淀组织形貌( $k = 3.6, t = 1500$ ) (a)无外加应变作用, (b) $\epsilon_{11} = 0.015$  (c) $\epsilon_{22} = 0.015$  (d) $\epsilon_{12} = 0.015$

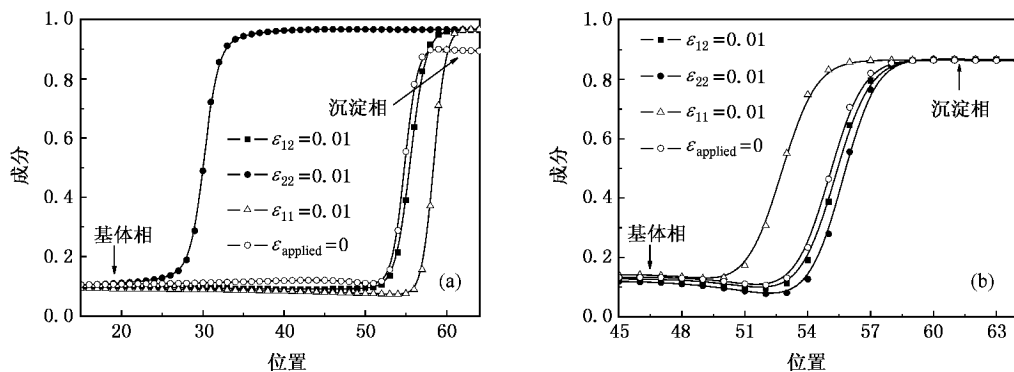


图 6 不同加载条件下经过沉淀中心沿 [01] 方向界面附近成分分布曲线 ( $t = 1000$ ) (a)  $k = 0.3$ , (b)  $k = 3.6$

有重要影响,而且当系统中弹性不均匀性较大时,弹性场的存在还会严重影响基体与沉淀相的平衡成分.图 6 所示为  $k < 1$  (图 (a))和  $k > 1$  (图 (b))两种情形下,沉淀颗粒在不同加载模式下的界面附近的成分分布曲线( $t = 1000$ ),可以发现,对不同的加载条件,其两相的成分分布是有所不同的.由于  $t = 1000$  时,系统的演化已接近平衡状态,因此此时的成分可认为是两相的平衡成分.显然,对  $k < 1$  时,弹性场对沉淀相的平衡成分影响较大,而在  $k > 1$  时,弹性场对基体相的平衡成分影响较大.

为了深入分析弹性场在沉淀相变中对基体与沉淀相的平衡成分的影响,以软沉淀为例,来分析弹性能对沉淀相变的自由能-成分曲线的影响,如图 7 所示,其中,实线对应的是无弹性场作用时的两相自由能曲线,虚线对应的是仅在本征弹性场作用下的两相自由能曲线,点画线对应的是在外加应变作用下的两相自由能曲线.由于弹性场的存在,系统中沉淀颗粒和基体均会受到弹性场的作用,其基体所积累的弹性能要高于沉淀颗粒所积累的弹性能,因此在自由能-成分曲线上表现为基体和沉淀颗粒的自由能曲线均有所升高,而基体自由能曲线升高的幅度要高于沉淀相,这时其所对应的相平衡成分就会发生改变.

当仅有本征弹性场的作用时,相对无弹性场的沉淀相变,其沉淀相的平衡成分将降低,而相应基体的平衡成分将升高,在第二相体积分数较小的情况下,根据质量守恒定律,第二相的体积分数将进一步减小.所以,当  $t = 1000$  时,单个沉淀颗粒由初始形状为  $R = 20$  的圆形变为更小的形貌(如图 3 所示).而当存在外加应变场时,此时系统的弹性能更大,自由能曲线表现为继续上升(如图 7 点画线所示),沉淀和基体的成分都发生改变,弹性软沉淀的成分比

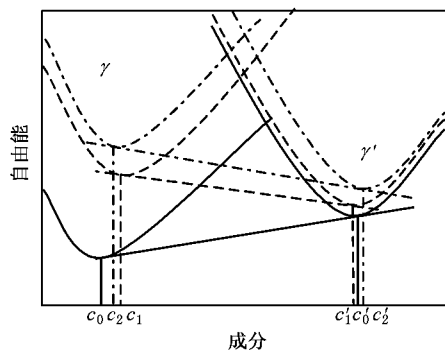


图 7 自由能-成分曲线示意图 ( $\gamma$  为基体相自由能;  $\gamma'$  为沉淀相自由能;实线为无弹性作用;虚线为仅本征弹性场;点画线为存在外加应变)

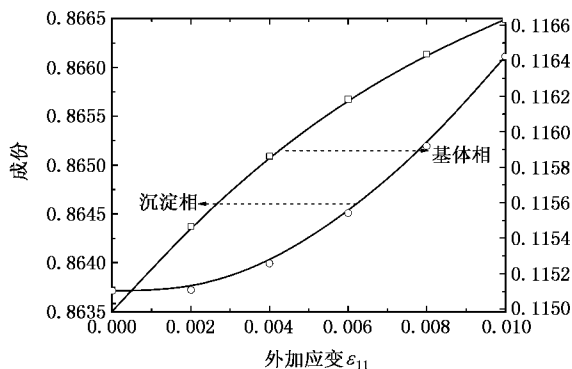


图 8 单颗粒硬沉淀 ( $k = 3.6$ ) 及相应基体成分随拉应变变化曲线

仅在弹性场作用时有所升高,而相应基体的成分有所降低(如图 (a)).而外加应变对硬沉淀相和相应基体成分的影响和软沉淀情形基本相同,外加应变倾向于使沉淀的成分升高,使相应基体的成分降低,不同的是拉应变  $\epsilon_{11}$  作用时的基体成分比无外加应变作用时高(如图 (b)).

图 8 所示为外加应变大小对基体和沉淀相的平

衡成分的影响. 当外加应变的大小发生变化时, 基体和沉淀相的成分也发生变化, 在大小不同的拉应变  $\epsilon_{11}$  作用下, 单颗粒硬沉淀 ( $k = 3.6$ ) 随拉应变  $\epsilon_{11}$  的增大, 其平衡成分逐步增大, 而相应基体的成分也逐步增大, 这同样表明了外加应变场对基体与沉淀相的平衡成分有重要影响.

## 5. 结 论

本文采用相场法模拟了单颗粒及多颗粒沉淀组织在不均匀共格本征弹性场及外加约束弹性应变作用下的组织形貌演化, 通过探讨不均匀共格本征弹

性场及外加约束弹性应变对共格沉淀组织形貌及对沉淀相变的相平衡成分的影响. 主要结论有:

1. 弹性场对沉淀组织形貌影响显著. 在不同的弹性条件下, 沉淀组织演化为不同的形貌. 系统组织演化过程是一自由能降低的过程, 组织形貌的变化主要由弹性能和界面能共同决定. 单个颗粒时, 界面能较小, 系统的弹性能对组织演化起决定作用. 多个颗粒时界面能和弹性能共同作用.

2. 弹性场与沉淀相变的相平衡成分密切相关. 弹性场的存在会使系统的自由能-成分曲线有所改变, 进而使沉淀相变中的基体与沉淀相的平衡成分发生改变.

- [1] Xu Z, Zhao L C 2004 *Principle of solid transitions in metals* (Beijing Science Press) p9 (in Chinese) [徐 洲、赵连城 2004 金属固态相变原理(北京 科学出版社)第 9 页]
- [2] Prikhodko S V, Ardell A J 2003 *Acta Mater.* **51** 5001
- [3] Ardell A J, Prikhodko S V 2003 *Acta Mater.* **51** 5013
- [4] Prikhodko S V, Ardell A J 2003 *Acta Mater.* **51** 5021
- [5] Caginalp G, Xie W 1993 *Phys. Rev. E* **48** 1897
- [6] Caginalp G, Socolovsky E A 1989 *Appl. Math. Lett.* **2** 117
- [7] Jou H J, Leo P H, Lowengrub J S 1997 *J. Comp. Phys.* **131** 109

- [8] Lee J K 1997 *Mater. Sci. Eng. A* **238** 1
- [9] Lee J K 1995 *Metall. Mater. Trans.* **27** A 1449
- [10] Li D Y, Chen L Q 1999 *Acta Mater.* **47** 247
- [11] Hu S Y, Chen L Q 2001 *Acta Mater.* **49** 1879
- [12] Zhu J Z, Chen L Q, Shen J 2001 *Model. Sim. Mat. Sci. Eng.* **9** 499
- [13] Cahn J W 1961 *Acta Metall.* **9** 795
- [14] Chen L Q, Shen J 1998 *Comput. Phys. Commun.* **108** 147

# Phase-field simulation of the influence of elastic field on microstructure evolution and equilibrium composition of precipitation<sup>\*</sup>

Zhang Yu-Xiang Wang Jin-Cheng<sup>†</sup> Yang Gen-Cang Zhou Yao-He

(State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

(Received 8 July 2005; revised manuscript received 28 July 2005)

## Abstract

We have simulated the microstructure evolutions of coherent single precipitate and multi-precipitates with inhomogeneous eigen elastic field and applied external strain using phase-field method. The influences of the inhomogeneous eigen elastic field and applied external strain on the morphology pattern of the coherent precipitate are discussed, and the effect of the elastic field on the equilibrium compositions of the precipitate and the matrix phase is also analyzed.

**Keywords:** phase-field method, precipitate, elastic field, equilibrium composition

**PACC:** 6400, 6470K, 8130M

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50401013).

<sup>†</sup> E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn