

三种变速条件下共晶生长的多相场法模拟^{*}

朱耀产[†] 王锦程 杨根仓 杨玉娟

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室,西安 710072)

(2006 年 11 月 14 日收到 2007 年 1 月 30 日收到修改稿)

利用多相场模型模拟了共晶合金 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 定向凝固变速生长过程,研究了阶跃变速、线性变速以及震荡变速三种变速条件下共晶片层间距的调整以及形态的变化.结果表明:在变速生长过程中,界面平均生长速率与平均过冷度随抽拉速率的变化均产生滞后效应.阶跃增速时,片层间距的调整通过突变分岔形式进行,而阶跃减速时,通过片层的逐步湮没与合并以及自身相的长大方式进行,两个过程表现出强烈的非对称性.线性增速过程,片层间距的调整通过逐步分岔进行,而线性减速过程,片层间距的调整机理与阶跃减速过程类似.线性增速与线性减速过程片层间距的调整具有逆对称性.在震荡变速作用下,片层生长形成类似 $1\lambda 0$ 振荡不稳定性形态.

关键词:多相场,共晶,变速生长,片层间距

PACC: 8140, 8110D, 8130F

1. 引 言

自 Jackson 和 Hunt^[1]提出共晶稳态生长的经典理论分析,共晶稳态生长的实验与理论研究日臻完善^[2-8].然而,对于由生长速率变化引起的共晶非稳态生长行为,如变速下的形态以及片层间距的动力学调整,虽然也得到了广泛的实验研究^[9-12],但这一方面深入的理论研究仍然非常匮乏. Carlberg 和 Fredriksson^[9]研究了 Ag-Cu, Al-Cu, Al-Zn 合金系共晶片层调整机理及其动力学过程,发现 Ag-Cu 合金系凝固过程中,随生长速率的增大,片层间距通过突变的方式调整,而 Al-Cu, Al-Zn 合金系通过连续调整的方式进行. Seetharaman 和 Trivedi^[10]通过阶跃式地改变透明系合金 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 的生长速率,对片层间距调整机理如分岔、形核、湮没与合并,进行了系统的动力学研究,发现不同变速比下具有不同的片层间距调整方式. Karma 和 Sakissian^[11]利用边界积分法对共晶片层不稳定性形态的形成进行了系统的数值研究,随后 Gimibre 等人^[12]的实验验证了其大部分结果.然而对于共晶变速生长过程,由于涉及到复杂的形态演化、突变分岔等问题,边界积分法就无法处理.

相场模型采用弥散界面理论,将系统视为一个

整体,通过求解描述系统的偏微分方程组以反映界面的弥散行为.该弥散界面行为可直观地反映微观组织的形成与演化,避免了显式跟踪运动界面,同时也对相变过程复杂的自由边界问题实现了高效的求解. Steinbach 等人^[13]提出了多相场的概念,使相场法能够更为广泛地应用于多元多相系统(共晶、包晶、偏晶、多晶等)相变过程的模拟^[14-19],此后基于弥散界面理论的多相场法成功地解决了多相系统相变所关心的多界面形成与演化过程,引起了研究者广泛的兴趣,已经成为目前微观组织数值模拟的研究热点.同时,多相系统凝固过程往往存在耦合生长现象,形成出丰富多样的形态,而薄片层共晶定向凝固是这类耦合生长的代表,因此采用多相场法研究共晶片层的稳态与非稳态生长具有重要的理论意义.目前多相场法数值模拟共晶凝固过程,多集中于稳态生长的定性、定量模拟以及在恒定速率下共晶不稳定性形态的形成^[14,16,19],在变速生长方面的研究未见报道.

基于以上论述,本文作者在前期共晶合金 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 阶跃变速生长研究^[20]的基础上,利用多相场法模拟三种不同变速生长条件下的共晶片层生长,通过计算界面平均生长速率以及平均过冷度考察界面微观动力学过程,系统地研究三种变速生长条件

^{*} 国家自然科学基金项目(批准号 50271057)资助的课题.

[†] E-mail: zhuyaocan1978@hotmail.com

下共晶片层间距的选择机理以及形态变化。

2. 多相场模型

本文采用 Kim 等人提出的多相场模型^[16],该模型优于其他多相场模型^[14,15,17,19],表现为界面处化学位相等且连续,同时可采用真实合金热力学数据库,相场动力学方程为

$$\frac{\partial \Phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{n} \sum_{j \neq i}^3 s_{ij} M_{ij} \left[\frac{\delta F}{\delta \Phi_i} - \frac{\delta F}{\delta \Phi_j} \right], \quad (1)$$

式中

$$\frac{\delta F}{\delta \Phi_i} = \sum_{j \neq i} \left[\frac{\epsilon_{ij}^2}{2} \nabla^2 \Phi_j + \omega_{ij} \Phi_j \right] - \frac{RT_E}{v_m} \left(c_E - \frac{T_E - T}{m_i} \right) (1 - k_i) - \frac{RT_E}{v_m} c_i, \quad (2)$$

Φ_i 为相场, $\Phi_i = 1$ 表示 i 体积相, $\Phi_i = 0$ 表示非 i 体积相; F 为体系自由能; n 为体积相相关变量; s_{ij} 为界面数相关变量; M_{ij} 为相场动力学系数; ϵ_{ij} 为梯度能系数; ω_{ij} 为势能垒; c_E 为共晶成分; c_i 为 i 相成分; T_E 为共晶温度; k_i 为平衡分配系数; m_i 为平衡液相线斜率。

溶质守恒方程为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot D(\Phi_3) \sum_{i=1}^3 \Phi_i \nabla c_i, \quad (3)$$

$$D(\Phi_3) = D_S(\Phi_3 < 0.1), D_L(\Phi_3 \geq 0.1), \quad (4)$$

式中, D_S 和 D_L 分别为固相和液相的扩散系数, 平均成分 c 为

$$c(x, t) = \sum_i^3 \Phi_i(x, t) c_i(c, t). \quad (5)$$

式(2)和式(3)构成了多相场模型, 将其映射到两相系统, 可以得到相场参数 (ϵ_{i3} , ω_{i3} , M_{i3}) 和材料参数之间的关系^[16]。

3. 初边值条件与参数

采用基于均匀网格的有限差分法求解多相场方程(2)和方程(3)。平行于温度梯度方向的计算域两侧相场和溶质场应用周期性边界条件, 而上下端应用零纽曼边界条件。在计算区域的底部, 以相应抽拉速率下的最小过冷片层间距 λ_{IH} 为参考, 引入初始共晶片层。为了模拟实验过程中初始片层间距的不均匀性, 在平均片层间距不变的前提下, 通过人为调整初始片层的网格数, 加入小幅度的片层间距扰动。温度梯度 $G = 0.8 \times 10^4$ K/m, 界面厚度 $\xi = 0.7 \times 10^{-6}$ m, 空间步长 $dx = 0.2 \mu\text{m}$, 时间步长 dt 由差分格式的稳定性确定。共晶合金 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 的材料参数见文献[21]。采用溶质场云图显示成分场及界面形态, 图中黑色区域为 α 相, 白色区域为 β 相, 灰色区域为液相, 灰度的变化表示成分分布的变化。

变速过程设计如下: 当初始稳态生长实现时, (1)

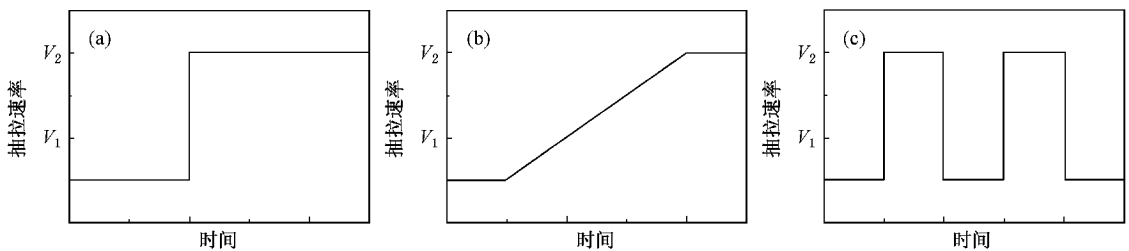


图1 变速示意图 (a) 阶跃增速 (b) 线性增速 (c) 震荡变速

阶跃增速过程由初始抽拉速率 $V_1 = 2 \mu\text{m/s} \rightarrow V_2 = 10 \mu\text{m/s}$, 如变速示意图 1(a); 2) 阶跃减速过程为阶跃增速对称逆过程, 由 $V_1 = 10 \mu\text{m/s} \rightarrow V_2 = 2 \mu\text{m/s}$; 3) 线性增速过程由初始抽拉速率 $V_1 = 2 \mu\text{m/s} \rightarrow V_2 = 10 \mu\text{m/s}$, 加速度为 $0.11 \mu\text{m/s}^2$, 如示意图 1(b); 4) 线性减速过程为线性增速对称逆过程, $V_1 = 10 \mu\text{m/s} \rightarrow 2 \mu\text{m/s}$, 加速度为 $-0.11 \mu\text{m/s}^2$; 5) 震荡抽拉速率范围为 $V_1 = 2 \mu\text{m/s} - V_2 = 4 \mu\text{m/s}$, 频率为 0.343 Hz , 如示

意图 1(c)。

4. 结果与讨论

抽拉速率的变化将导致不稳定性形态的形成, 甚至引起稳态生长的重建过程中片层间距的剧烈变化, 从而改变共晶凝固微观组织结构。随着抽拉速率变化方式的改变, 界面局部微观动力学过程产生复杂变化, 与具体的凝固路径有关。以下为三种变速条

件下片层共晶的组织演化、片层间距调整以及界面平均生长速率和平均过冷度的变化情况。

4.1. 阶跃增速

图 2(a) 为阶跃增速过程引起片层突变分岔现象的模拟。图 2(b) 为界面平均过冷度以及平均生长速率随时间的变化曲线, 曲线所标各点分别对应图 2(a) 相应的位置, 其中: A 处为阶跃增速起始位置, B 处为片层分岔处位置, D 处为稳态重新建立位置。图 2(a) 表明: 阶跃增速过程片层细化机理为白色 β 相片层尖端的分岔, 相对于阶跃变速时刻, 该突变分岔行为具有明显的滞后性, 与 Seetharaman 等人^[10] 在低速小变速比 ($0.2 \mu\text{m/s} - 0.8 \mu\text{m/s}$) 下 β 相的耙子形对称分岔实验结果相符合。

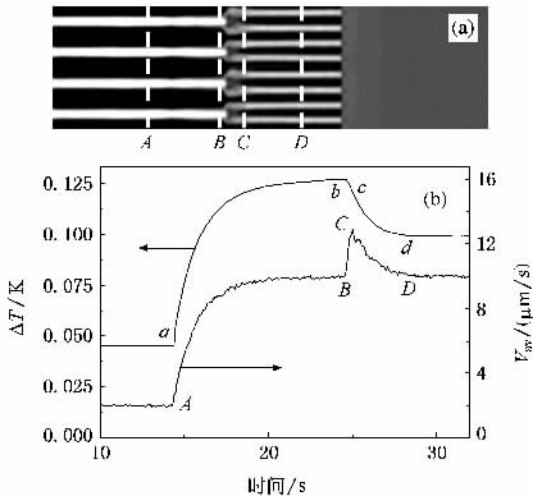


图 2 阶跃增速生长 (a) 溶质场及界面面貌 (b) 界面平均过冷度与平均生长速率

由图 2(b) 可见, 阶跃增速开始至分岔的起始处 ($A - B$), 固/液界面平均生长速率从 $2 \mu\text{m/s}$ 快速增加, 随后缓慢趋于抽拉速率 $10 \mu\text{m/s}$, 经过一段时间后分岔才开始, 其原因是溶质传输惯性引起溶质扩散的滞后。这个过程中界面平均过冷度一直增大 ($a - b$), 并在 b 处附近具有最大值, 其值大于 $10 \mu\text{m/s}$ 稳态生长条件下相应界面平均过冷度, 为 β 相的分岔提供了驱动力。

分岔一旦开始 (B 位置), 片层数的增加急剧地减小了相间距, 固/液界面前沿区域溶质的横向扩散能力增强, 有利于片层生长, 使界面平均速率超过 $10 \mu\text{m/s}$ 且很快达到一个最大值 (约为 $12.9 \mu\text{m/s}$), 再次形成溶质传输惯性, 使随后的界面平均生长速率下降并趋于抽拉速率 $10 \mu\text{m/s}$ 。从分岔开始到稳态生

长重新建立, 界面始终以大于 $10 \mu\text{m/s}$ 的生长速率向液相热端运动, 使界面平均过冷度不断减小 ($b - d$)。

4.2. 线性增速

图 3(a) 为线性增速过程中白色 β 相片层在不同位置处的逐步分岔现象, 图中 B 处为逐步分岔处起始位置。这一逐步分岔规律与徐达鸣等人^[22] 线性增速条件下共晶合金 Pb-Sn 的实验结果定性相符合。图 3(b) 反映了线性增速过程界面平均过冷度以及平均生长速率的变化, 图中点划线为实际抽拉速率变化曲线。

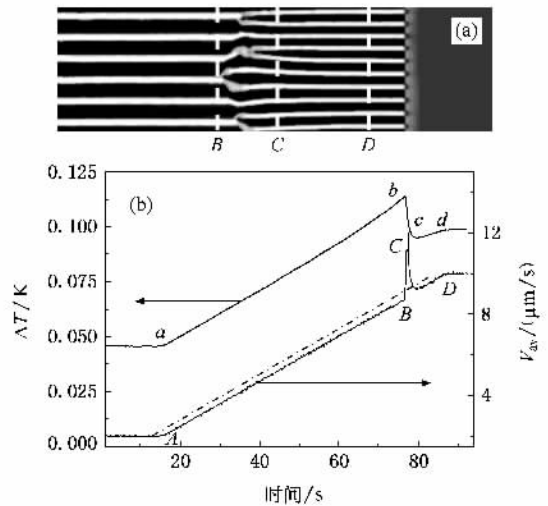


图 3 线性增速生长 (a) 溶质场及界面面貌 (b) 界面平均过冷度与平均生长速率 (点划线为实际抽拉速率变化曲线)

与阶跃增速过程相比, 线性增速过程的溶质传输惯性大大减弱, 使界面平均生长速率总是稍小于实际抽拉速率, 如图 3(b) 所示, 实际抽拉速率变化曲线 (点划线) 位于界面平均生长速率的左上方。随着抽拉速率线性增大, 溶质扩散的滞后效应得到不断的累积, 使界面平均过冷度一直增大, 并在 b 处附近具有最大值, 为分岔集聚了所需的驱动力, 最终, 初始片层间距的不均匀性使相间距较大的白色 β 相片层优先分岔, 同时, 优先分岔后片层影响了临近片层的生长行为, 使其随后产生分岔或者片层自身相减小。由于逐步分岔范围较窄, 见图 3(a), 因此分岔后界面平均生长速率与平均过冷度的变化表现出与阶跃增速过程一致的规律: 界面平均生长速率先增大后减小, 而界面过冷度在持续减小。

4.3. 阶跃减速

实验研究^[10] 表明, 阶跃减速过程, 片层间距的

调整通过湮没与合并的方式进行.图 4(a)模拟了抽拉速率由 $10 \mu\text{m/s}$ 阶跃减速至 $2 \mu\text{m/s}$ 的片层生长行为,界面平均过冷度与平均生长速率随时间的变化见图 4(b).

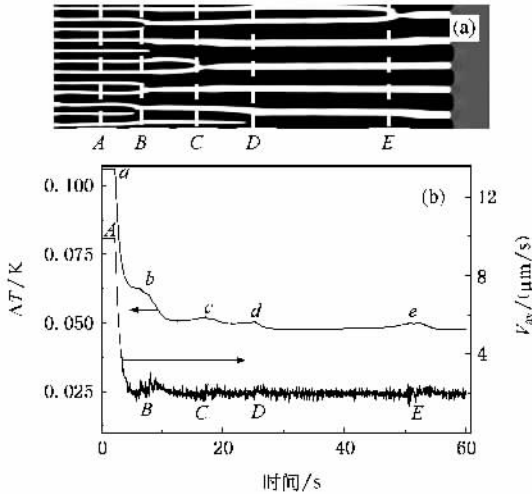


图 4 阶跃减速生长 (a)溶质场及界面面貌 (b)界面平均过冷度与平均生长速率

阶跃减速使实际界面平均生长速率剧烈减小,而强烈的溶质传输惯性使其滞后,从而实际界面平均生长速率大于抽拉速率 $2 \mu\text{m/s}$ (图 4(b)A—B).界面过快地向液相热端运动使界面平均过冷度减小(图 4(b)a—b).随着界面平均生长速率的进一步减小,局部间距较小的片层优先被湮没,两侧片层合并,该现象不仅发生在黑色 α 相,同时也发生在白色 β 相,此后通过这类湮没与合并以及自身相的长大,平均片层间距不断调整,趋于增大,见图 4(a)中 A, B, C, D, E 位置.在趋于湮没与合并产生的时刻,如 D 时刻,一方面,局部间距较小的片层,其液相前沿溶质横向扩散距离增大,不利于其平行于温度梯度方向的生长,另一方面,相邻的两个具有合并趋势的片层生长偏离温度梯度方向,平行于温度梯度方向的生长减缓.两者共同作用使界面平均生长速率减小(小于抽拉速率),一旦湮没结束,合并形成的新片层在局部快速生长使平均生长速率增大,并短时间内超过抽拉速率,最终由于溶质传输惯性而减小并趋于抽拉速率.这种较短时间内的平均生长速率变化,导致了界面平均过冷度相应地先增大后减小.

比较图 2 与图 4,可以发现,阶跃减速过程片层间距的渐变式调整,与阶跃增速过程的突变式调整形成强烈的非对称性,其实现稳态生长所需的时间

明显比阶跃增速过程相应的时间长,与共晶 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 阶跃减速实验结果^[10]相符合.

4.4. 线性减速

线性减速过程中片层间距的调整机理(见图 5(a))与阶跃减速过程相似.由于抽拉速率缓慢线性地减小,溶质传输惯性使界面平均生长速率总是稍大于实际抽拉速率(见图 5(b)中点划线).整个过程中固/液界面前沿溶质场的扩散较阶跃减速过程更充分,因此片层间距的调整过程相对缓慢,片层的湮没与合并现象减少,间距的调整更多地采用片层湮没与合并后自身相的长大方式进行.在片层的湮没与合并过程中,界面平均生长速率在短时间内波动,界面平均过冷度相应地先增大后减小(见图 5(b)),其产生的原因与变化规律与阶跃减速过程规律一致.比较图 3 与图 5 可以发现,在线性增速和线性减速变速下,片层的调整过程具有明显的逆对称性,与徐达鸣等人^[22]线性变速条件下共晶合金 Pb-Sn 的实验结果定性相符合.

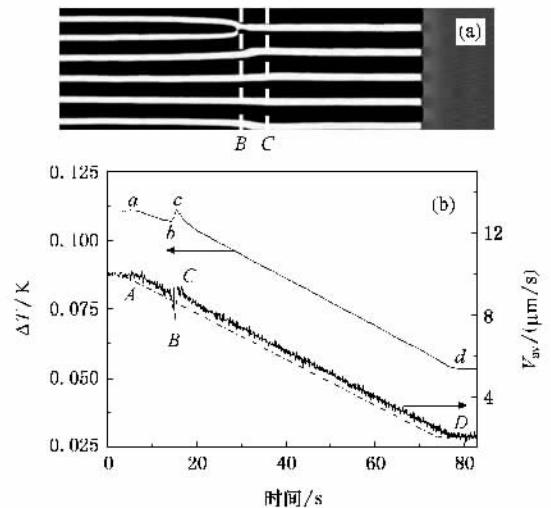


图 5 线性减速生长 (a)溶质场及界面面貌 (b)界面平均过冷度与平均生长速率(点划线为实际抽拉速率变化曲线)

4.5. 震荡变速

如图 6(a)所示,抽拉速率的振荡引起了共晶片层生长的失稳,形成了类似 $1\lambda 0$ 振荡不稳定性形态.图 6(b)显示了界面平均生长速率以及平均过冷度的变化,两者表现出同步锯齿形振荡形式.当界面抽拉速率在 $2 \mu\text{m/s}$ 和 $4 \mu\text{m/s}$ 之间振荡变化时,见示意图 1(c),由于溶质传输惯性引起溶质扩散强烈的滞后效应,实际界面平均生长速率约在 $2.5 \mu\text{m/s}$ 和

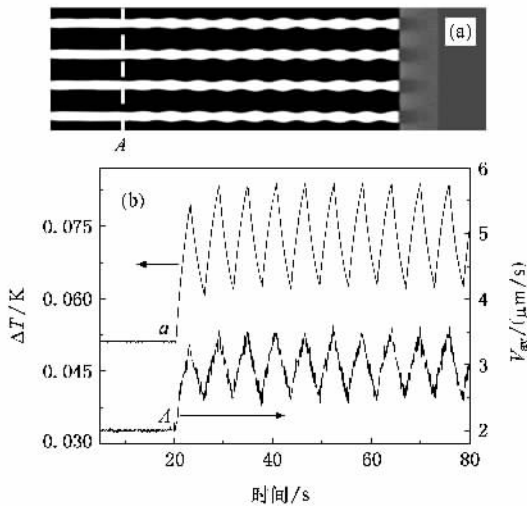


图6 振荡变速生长 (a)溶质场及界面形貌 (b)界面平均过冷度与平均生长速率

$3.5 \mu\text{m/s}$ 之间振荡,而界面平均过冷度约在 0.063 K 和 0.083 K 之间振荡,同时也使两者第一个波峰值较小.在整个过程中,由于相体积分数调整以及溶质再分配的共同作用,最终使片层形态表现出类似 $1\lambda 0$ 振荡不稳定性.在一定条件下,实验和数值模拟均能够在恒定速率下形成 $1\lambda 0$ 振荡不稳定性形态^[11,12,16],由于在平行于温度梯度方向的固/液界面形态变形非常有限(小于片层间距),因此这种自发

形成的界面平均过冷度和平均生长速率的振荡远小于本文相应的模拟结果,从而两者形态上相似,但其形成原因有本质的区别.

5. 结 论

1. 在不同的变速生长过程中,界面平均生长速率偏离抽拉速率,界面平均过冷度相应地随之变化,同时,两者均具有一定的滞后性.

2. 在阶跃增速过程,片层间距的调整呈突变式滞后响应,而在阶跃减速过程,片层间距调整呈渐变式滞后响应,其完成间距调整,最终实现稳态生长的时间较阶跃增速过程相应的时间长.这两个过程对比所表现出的强烈的非对称性与实验观测结果一致.

3. 线性增速过程中,片层间距调整主要通过渐变式分岔进行,区别于阶跃增速突变式分岔,线性减速过程中,片层间距的调整方式通过片层的淹没以及自身相的长大进行,与阶跃减速过程类似.线性增速和线性减过程中,片层间距的调整呈逆对称性.

4. 在振荡的抽拉速率条件下,片层生长形成类似于 $1\lambda 0$ 振荡不稳定性形态,同时,界面平均生长速率和平均过冷度的变化表现出同步的锯齿形振荡形式.

- [1] Jackson K A , Hunt J D 1966 *TMS-AIME* **236** 1129
- [2] Datye V , Langer J S 1981 *Phys. Rev. B* **24** 4155
- [3] Yao X D , Huang T , Zhou Y H , Hu Z Q 1996 *Prog. Nat. Sci.* **6** 679 (in Chinese) [姚向东,黄 韬、周尧和、胡壮麒 1996 自然科学进展 **6** 679]
- [4] Yao X D , Huang T , Zhou Y H , Hu Z Q 1997 *Prog. Nat. Sci.* **7** 24 (in Chinese) [姚向东,黄 韬、周尧和、胡壮麒 1997 自然科学进展 **7** 24]
- [5] Liu J M 1992 *Acta Phys. Sin.* **41** 861 (in Chinese) [刘俊明 1992 物理学报 **41** 861]
- [6] Karma A , Plapp M 2004 *JOM* **4** 28
- [7] Liu J C , Elliott R 1997 *Acta Mater.* **43** 3301
- [8] Magnin P , Trivedi R 1991 *Acta Metall. Mater.* **39** 453
- [9] Carlberg T , Fredriksson H 1977 *J. Cryst. Growth* **42** 526
- [10] Seetharaman V , Trivedi R 1988 *The Metall. Soc* **1** 65
- [11] Karma A , Sarkissian A 1996 *Mater. Trans. A* **27** 635
- [12] Ginibre M , Akamatsu S , Faivre G 1997 *Phys. Rev. E* **56** 780
- [13] Steinbach I , Pezzolla F 1999 *Physica D* **134** 385
- [14] Nestler B , Wheeler A A 2000 *Physica D* **138** 114
- [15] Nestler B , Wheeler A A , Ratke L , Stöcker C 2000 *Physica D* **141** 133
- [16] Kim S G , Kim W T , Suzuki T , Ode M 2004 *J. Cryst. Growth* **261** 135
- [17] Tiaden J 2004 *J. Cryst. Growth* **198/199** 1257
- [18] Hecht U , Grünäy L , Pusztai T , Böttiger B 2004 *Mater. Sci. Eng. R* **46** 1
- [19] Folch R , Plapp M 2003 *Phys. Rev. E* **68** 010602
- [20] Zhu Y C , Wang J C , Yang G C , Zhao D W 2007 *Acta Metall. Sin.* **43** 163 (in Chinese) [朱耀产、王锦程、杨根仓、赵达文 2007 金属学报 **43** 163]
- [21] Mergy J , Faivre G , Guthmann C , Mellet R 1993 *J. Cryst. Growth* **134** 353
- [22] Xu D M , Cao F Y , Li Q C 1995 *Acta Metall. Sin.* **31** 494 (in Chinese) [徐达鸣、曹福洋、李庆春 1995 金属学报 **31** 494]



Multiphase field simulation of the eutectic growth under three schemes of varying velocity^{*}

Zhu Yao-Chan[†] Wang Jin-Cheng Yang Gen-Cang Yang Yu-Juan

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

(Received 14 November 2006 ; revised manuscript received 30 January 2007)

Abstract

By multiphase field model method, the unidirectional solidification of eutectic alloy $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ is simulated, and the adjustment of lamellar spacing and morphology evolution have been investigated under three schemes of variable pulling speed, i. e., the stepped change, the linear change and the oscillatory change. The simulation results show that, for the growth under these three schemes, both the interface average velocity and the interface average undercooling show hysteresis effect. When the stepped increase or decrease in velocity is imposed, the lamellar spacing adjustment is realized through abrupt branching or progressive merging and annihilation accompanying the lamellar growing, respectively, and there is strong asymmetry in these two processes during lamellar adjustment. In the case of linear increase in velocity, the lamellar spacing changes by progressive branching, while in the case of linear decrease in velocity, the mechanism of adjustment of lamellar spacing is similar to that of growth under stepped decrease of velocity. The processes for linear increase and decrease in velocity show inverse symmetrical characteristic. A quasi- 1λ oscillation mode is present when an oscillatory pulling speed is applied.

Keywords : multiphase field, eutectic, growth at varying velocity, lamellar spacing

PACC : 8140, 8110D, 8130F

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50271057).

[†] E-mail : zhuyaocan1978@hotmail.com