

共晶形态层—棒转变的多相场法研究*

杨玉娟 王锦程† 张玉祥 朱耀产 杨根仓

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2008 年 4 月 25 日收到, 2008 年 6 月 23 日收到修改稿)

利用 KKS0 多相场模型研究了不同抽拉速度及不同液相溶质扩散系数条件下共晶形态层—棒状转变过程. 模拟结果表明: 在抽拉速度较低时, 层片共晶首先发生合并现象, 然后继续以层片形态生长; 增大抽拉速度, 发生层片合并后共晶形态由层片向棒状转变, 进一步增大抽拉速度, 层片不发生合并, 仅以初始层片间距进行稳态层片生长. 溶质扩散系数条件的改变同样会导致共晶形态发生层—棒状转变, 结果还表明层—棒转变仅在一定参数范围内发生. 模拟结果与实验研究定性符合.

关键词: 层—棒转变, 多相场, 数值模拟

PACC: 8140, 8110D, 8130F

1. 引 言

作为经典 Jackson-Hunt (J-H) 模型^[1]所描述两种典型共晶形貌的层片状共晶和棒状共晶及其相互转变历来都是材料科学领域的焦点问题之一. Jackson 等指出共晶以层片状形态存在还是以棒状形态存在与体积分数有关, 在两相间的界面张力相同的情况下, 某一相体积分数若小于 $1/\pi$, 该相将以棒状结构出现, 反之两相则以层片状结构出现^[2,3]. 另外 Tiller 等研究表明, 共晶以何种形态出现与生长速度有关, 生长速度较低时, 共晶呈层片状生长, 生长速度较高时, 共晶则以棒状形态进行生长^[4]. Chadwick 等研究了杂质元素对共晶形态转变的影响, 发现杂质元素的存在会改变固/液界面前沿的成分过冷, 使固/液界面变为胞状界面, 导致棒状共晶形态的出现^[5]. 此外, Lin 等通过对铜-铬合金的研究表明, 溶质扩散系数的降低也将导致棒状形态的分枝与细化^[6].

近年来兴起的相场法已经成为材料研究领域一种重要的微观组织数值模拟方法. 由于层片共晶形态相对简单, 且在层片厚度比较低的薄试样中可将复杂共晶固/液界面模型转化为一维共生界面, 因此以往关于薄试样共晶形态稳定性的研究主要是基于

层片状共晶^[7-10]. 而棒状共晶由于其复杂的二维生长界面, 要全面认识棒状共晶形态, 必须建立三维系统, 因此国内外对它的研究较少. 最近已有一些利用相场法对三维共晶生长进行模拟的工作出现^[11-13]. 如 Nestler 等^[11]利用有限元法模拟了三维复杂共晶系统中二元及三元共晶生长; Apel 等^[12]通过相场模拟得到了棒状共晶形态; Lewis 等^[13]指出当该体积分数小于 0.3 时, 共晶形貌更趋于以棒状形态存在, 但是这些工作只是利用多相场数值模拟的方法在三维系统中所作的一些探索, 尤其对于层片状共晶与棒状共晶相互转变这一凝固理论领域的热点问题仅发现了在次要相体积分数较低时共晶形态趋于棒状形态存在, 并未深入研究层片共晶与棒状共晶的相互转变机理, 对于影响两种形态转变的因素国内外也仅停留在实验研究上. 基于此, 本文将利用 KKS0 多相场模型^[14], 研究抽拉速度及液相溶质扩散系数对共晶形态层—棒转变的影响.

2. 多相场模型

本文采用 KKS0 多相场模型, 其具体推导详见文献 [14], 该模型所用主要假设条件如下:

1) 定义系统的体积自由能函数

$$F = \int_V [f^p + f^l + L(\sum_i \phi_i - 1)] dV, \quad (1)$$

* 国家自然科学基金(批准号 50271057)资助的课题.

† E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

式中 f^p 为双阱势能, f^T 为热力学势能且

$$f^p = \sum_{i \neq j} \left[-\frac{\varepsilon_{ij}^2}{2} \nabla \phi_i \nabla \phi_j + \omega_{ij} \phi_i \phi_j \right];$$

$$f^T = \sum_{i=1}^3 \phi_i f^i(c_i), \quad (2)$$

L 是保证在体系任何位置的序参量守恒即

$$\sum_{k=1}^3 \phi_k(x, y, z, t) = 1 \text{ 的 Lagrange 系数.}$$

2) 假定界面上共存相化学势相等

$$f_{c_1}^1[c_1(x, t)] = f_{c_2}^2[c_2(x, t)] = f_{c_3}^3[c_3(x, t)] = f_c(x, t). \quad (3)$$

3) 视溶液的平均成分为计算中的溶质场变量

$$c(x, t) = \phi_1 c_1 + \phi_2 c_2 + \phi_3 c_3. \quad (4)$$

4) 分别用 α , β 和 γ 来描述共晶体系的三个相,

α 固相, $\phi_1 = 1$; β 固相, $\phi_2 = 1$; γ 液相, $\phi_3 = 1$.

根据以上条件和假设,可推导出相场 ϕ_i 随时间的演化方程在数学上表达为

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{n} \sum_{j \neq i} S_{ij} M_{ij} \left[\frac{\delta F}{\delta \phi_i} - \frac{\delta F}{\delta \phi_j} \right], \quad (5)$$

这里

$$\frac{\delta F}{\delta \phi_i} = \sum_{j \neq i} \left[\frac{\varepsilon_{ij}^2}{2} \nabla \phi_j + \omega_{ij} \phi_j \right] + f^i(c_i) - c f_c.$$

另外根据溶质守恒定律得溶质场方程为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla D \sum_i \phi_i \nabla c_i, \quad (6)$$

其中 M_{ij} 为相场动力学系数; ε_{ij} 为梯度项系数; ω_{ij} 为界面厚度参数; D 为扩散系数.

3. 计算条件

对多相场模型控制方程(5)(6)的离散采用基于均匀网格的显式有限差分方式.图1为三维共晶层片生长及空间坐标示意图,在图1中 w 为层片宽度, δ 为层片厚度, h 为层片生长高度,它们分别平行于 x , y , z 坐标轴,计算区域的网格数为 $L_m \times J_m \times K_m$.假定所有模拟在各向同性界面自由能下进行.模拟中的参数:体系温度梯度 $G = 0.8 \times 10^{-4}$ K/m,空间步长 $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.2 \mu\text{m}$,本文的研究对象为透明系 $\text{CBT}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 共晶成分(β 相体积分数 $\eta_\beta = 0.29$)合金,所用到的其他各物理参数见文献[15].根据两相的平衡体积分数来并排交替设置 α 相、 β 相,初始给定两个共晶层片.为达到更好的显示效果,文中所有模拟结果均利用周期性进行了叠加.在与温度梯度平行的方向采用绝热边界条件,而其

他两个方向采用周期性边界条件.

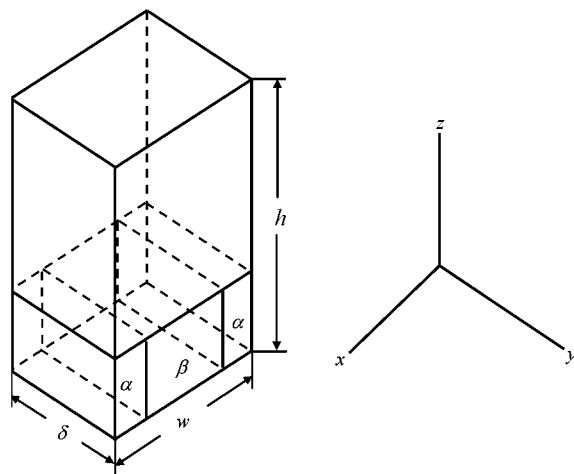


图1 定向凝固三维共晶层片生长及空间坐标示意图

4. 结果及讨论

4.1. 模拟结果

实验研究表明^[4-6],在一定条件下改变抽拉速度或扩散系数等会导致共晶形态的层—棒转变,本文将利用多相场模型再现共晶形态的层—棒转变过程.模拟结果采用溶质场图来描述共晶形态及成分的变化,分别在每组图的左侧给出总体等值面轮廓图,右侧给出对应位置的切片图,图中黑色区域为 α 相,白色区域为 β 相,灰色区域为液相.

4.1.1. 抽拉速度的影响

图2为不同抽拉速度下层片宽度和层片厚度均为 12.2×10^{-6} m(层片间距 $\lambda = 6.1 \times 10^{-6}$ m)共晶生长过程的模拟结果.图2(a)~(d)的抽拉速度分别为 2×10^{-6} m/s, 3×10^{-6} m/s, 4×10^{-6} m/s, 6×10^{-6} m/s,而其他初始条件均相同.在抽拉速度比较低时,如图2(a)所示,共晶层片首先发生合并现象,层片间距增大,然后以比较大的层片间距维持层片形态生长,增加抽拉速度后(如图2(b)),共晶层片发生合并后界面失稳,层片形态转变为棒状.进一步增加抽拉速度(如图2(c)),层片共晶仍然很快转变为棒状共晶.而当抽拉速度更大时,如图2(d)所示,共晶层片不再发生合并现象,也不向棒状形态转变,仅以初始层片间距进行稳态生长.

4.1.2. 液相溶质扩散系数的影响

图3所示为不同液相溶质扩散系数条件下的三

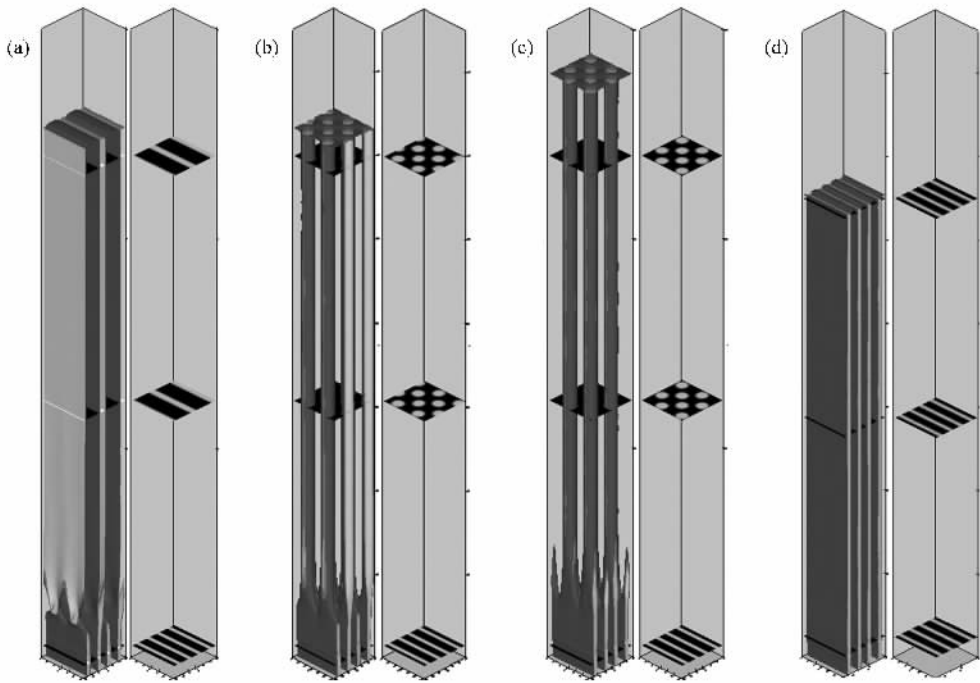


图2 不同抽拉速度下三维共晶生长过程的多相场模拟结果 (a) $v_p = 2 \times 10^{-6} \text{ m/s}$; (b) $v_p = 3 \times 10^{-6} \text{ m/s}$; (c) $v_p = 4 \times 10^{-6} \text{ m/s}$; (d) $v_p = 6 \times 10^{-6} \text{ m/s}$

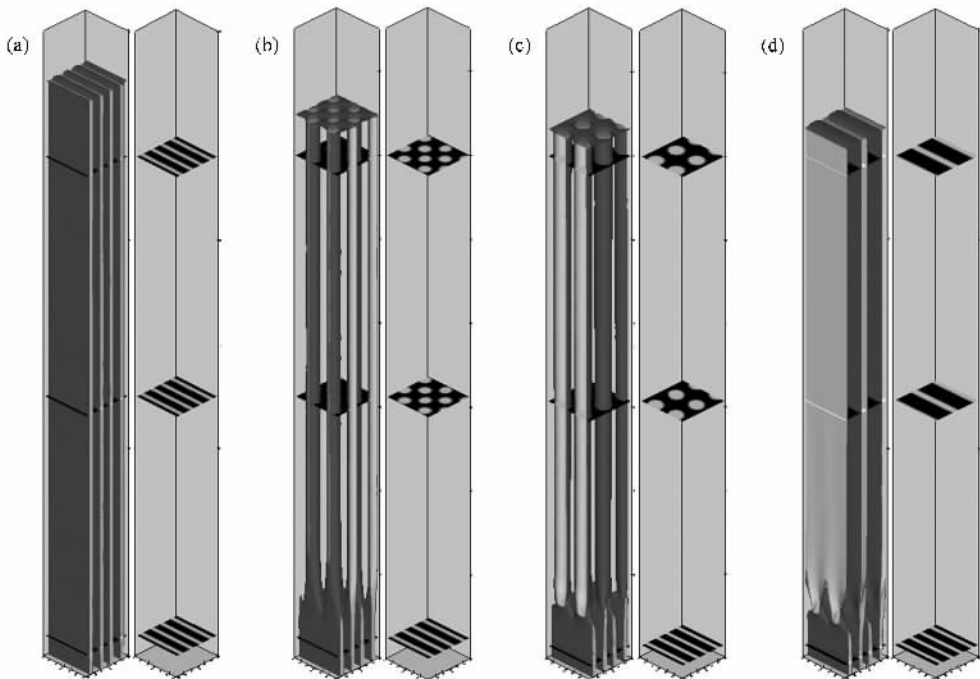


图3 不同液相溶质扩散系数条件下三维共晶生长过程的多相场模拟结果 (a) $D_L = 1.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$; (b) $D_L = 2.7 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$; (c) $D_L = 3.9 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$; (d) $D_L = 5.0 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$

维共晶生长过程的多相场模拟结果,层片宽度和层片厚度仍然都为 $12.2 \times 10^{-6} \text{ m}$. 图3(a)~(d)溶质扩

散系数分别为 $1.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$, $2.7 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$, $3.9 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$, $5.0 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$. 模拟结果表明,液相溶

质扩散系数对共晶形态层—棒转变的影响与抽拉速度的影响类似,在扩散系数较低时(图 3(a)),共晶层片维持稳态生长;而随着扩散系数的增加(图 3(b)),共晶层片首先发生合并现象随后向棒状形态转变;进一步增加扩散系数(图 3(c)),层片状共晶仍然向棒状形态转变,而且棒间距增大;而当扩散系数更大时(图 3(d)),层片首先发生合并,获得较大层片间距并以此层片间距进行层片生长。

4.2. 分析与讨论

理论上,Trivedi 等^[16]通过 J-H 模型计算两相界面能的比值与层片状形态和棒状形态的关系,发现当两种形态界面能相等时出现棒状共晶形态的最大体积分数为 28%。而本文 β 相体积分数恰好位于出现棒状共晶形态的临界点附近,因此随着凝固条件(抽拉速度、溶质扩散系数)的改变将会导致共晶形态的层—棒转变。

另外, Tiller 等^[4]认为共晶生长过程中,其形态将选择界面温度较高即过冷度较低的层片状形态或棒状形态而进行生长,当层片状形态的过冷度低于棒状形态的过冷度时,共晶以层片状形态生长,反之当棒状形态的过冷度低于层片状形态的过冷度时则以棒状形态生长。利用文献 [1] 所给层片共晶最小过冷度间距 λ_m 的计算公式,经过推导得到

$$\lambda_m = \sqrt{\frac{2D_L[(1-\eta)d_\alpha \sin\theta_\alpha + \eta d_\beta \sin\theta_\beta]}{\nu_p P(\eta)}}$$

式中 d_α 为 α 相的毛细长度, d_β 为 β 相的毛细长度, θ_α 为 α 相与液相的接触角, θ_β 为 β 相与液相的接触角, $P(\eta)$ 为与 η 有关的函数。可以看出, λ_m 与抽拉速度 ν_p 和液相溶质扩散系数 D_L 明显相关。根据文献 [15] 代入各参数值,可分别求出不同抽拉速度和不同液相溶质扩散系数下的最小过冷度间距及相应的形态演化如下表 1、表 2 所示。

表 1 不同抽拉速度下的最小过冷度间距

扩散系数 (D_L) ($10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$)	抽拉速度 (ν_p) (10^{-6} m/s)	最小过冷度间距 λ_m / 10^{-6} m	与初始层片间距 ($\lambda = 6.1 \times 10^{-6} \text{ m}$) 的关系
5.0	2	9.93	$\lambda < 0.65\lambda_m$ 发生层片湮没与合并现象
	3	8.12	$0.65\lambda_m < \lambda < \lambda_m$ 层片合并以后发生层—棒转变
	4	7.02	
	6	5.72	$\lambda_m < \lambda < 1.4\lambda_m$ 层片进行稳态生长

表 2 不同扩散系数下的最小过冷度间距

抽拉速度 ν_p / (10^{-6} m/s)	扩散系数 D_L / ($10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$)	最小过冷度间距 λ_m / 10^{-6} m	与初始层片间距 ($\lambda = 6.1 \times 10^{-6} \text{ m}$) 的关系
2	1.5	5.44	$\lambda_m < \lambda < 1.4\lambda_m$ 层片进行稳态生长
	2.7	7.30	$0.65\lambda_m < \lambda < \lambda_m$ 层片合并以后发生层—棒转变
	3.9	8.77	
	5.0	9.93	$\lambda < 0.65\lambda_m$ 发生层片湮没与合并现象

根据 J-H 共晶凝固理论,对于共晶生长过程存在如下关系: $\lambda^2 \nu_p = \text{常数}$ 。因此随着抽拉速度的升高,界面稳态生长速度也随之升高,进而导致稳态相间距降低及层片生长平界面失稳,最后棒状形态的出现。此外, Rios 等^[17]还指出速度的变化会引起生长方向的变化,也可能引起两相体积分数的变化,导致层片状共晶向棒状共晶形态转变。因此速度变化幅度的不同,将导致层—棒转变的趋势及程度不同。而关于扩散系数的影响研究也表明 $\lambda^2 \nu_p$ 与之相关^[5], 扩散系数提高,该乘积增大。因此模拟中增加

扩散系数,导致相间距增大,共晶层片的失稳,从而促进了层片状共晶向棒状共晶形态转变。随着扩散系数的进一步增大,棒间距也增大,而扩散系数更大时,棒间距的增大已经使棒状形态不能稳定存在,因此不向棒状形态转变,而是通过初始阶段发生合并现象,使层片数减少,获得较大层片间距后仍以层片形态生长。

上述结果表明,给定一定初始条件的层片状共晶分别在不同的抽拉速度和液相溶质扩散系数下进行模拟,在一定参数范围内能够发生层—棒转变,模

拟结果与前人实验研究结果^[4-6,17]定性一致。

5. 结 论

本文利用 KKSO 多相场模型对共晶生长过程进行模拟,模拟结果再现了不同抽拉速度及不同液相溶质扩散系数条件下共晶形态的层—棒转变过程,结果表明:KKSO 多相场模型在三维计算区域内能

够对棒状共晶生长形态进行很好地描述。在抽拉速度较低时,共晶层片首先发生合并,层片间距增大,随后以此较大的层片间距进行层片生长。随着抽拉速度的增大,共晶层片仍发生合并,但合并之后共晶形态由层片状向棒状转变。随着抽拉速度的进一步增大,共晶不再发生层片合并现象,仅以初始层片间距进行稳态层片生长。不同溶质扩散系数下的模拟结果表明其影响机理与抽拉速度的影响机理相类似。

- [1] Jackson K A , Hunt J D 1966 *Trans. Metal. Soc. AIM.* **236** 1129
- [2] Jackson K A 1966 *J. Institute Metal* **94** 125
- [3] Hunt J D , Chilton J P 1962—1963 *J. Institute Metal* **91** 338
- [4] Tiller W A 1958 *Liquid metals solidification* (Edited by Cleveland O , Amer. Soc. Metals) p276
- [5] Chadwick G A 1962—1963 *J Institute Metal* **91** 298
- [6] Lin Y L , Counteny T H , Stark J P 1976 *Metal. Trans. A* **7** 1435
- [7] Nestler B , Wheeler A A 2000 *Phys. D* **138** 114
- [8] Gimbre M , Akamatsu S , Faivre G 1997 *Phys. Rev. E* **56** 780
- [9] Yan Z J , Li J F , Wang H H , Zhou Y H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1867 (in Chinese) 闫志杰、李金富、王鸿华、周尧和 2003 物理学报 **52** 1867]
- [10] Yan Z J , Li J F , Zhou Y H , Wu Y Q 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 999 (in Chinese) 闫志杰、李金富、周尧和、仵彦卿 2007 物理学报 **56** 999]
- [11] Danilov D , Nestler B 2005 *J. Cryst. Growth* **275** 177
- [12] Apel M , Boettger B , Diepers H J , Steinbach I 2002 *J. Cryst. Growth* **237** 154
- [13] Lewis D J , Pusztai T , Granasy L , Warren J A , Boettinger W 2004 *JOM* **56** 34
- [14] Kim S G , Kim W T , Suzuki T , Ode M 2003 *J. Cryst. Growth* **261** 135
- [15] Mergy J , Faivre G , Mellet R 1993 *J. Cryst. Growth* **134** 353
- [16] Trivedi R , Mason J T , Verhoeven J D , Kurz W 1991 *Metall. Trans. A* **22** 2523
- [17] Rios C T , Ferrandini P L , Milenkovic S , Caram R 2005 *Mater. Character.* **54** 187

An investigation of the lamellar-rod transition in binary eutectic using multi-phase field model^{*}

Yang Yu-Juan Wang Jin-Cheng[†] Zhang Yu-Xiang Zhu Yao-Chan Yang Gen-Cang
(State Key Laboratory of Solidification Processing , Northwestern Polytechnical University , Xi ' an 710072 , China)
(Received 25 April 2008 ; revised manuscript received 23 June 2008)

Abstract

The KKSO multi-phase field model is employed to simulate the lamellar-rod transition with different pulling velocities and different solute diffuse coefficients in liquid. The simulation results show that the eutectic keeps lamellar growth after lamellar merging at small pulling velocity. With an increase of the pulling velocity, the lamellar eutectic transits to rod-like eutectic after lamellar merging. And the further increase of the pulling velocity will make the lamellar grow steadily with its initial lamellar spacing. It ' s also found that the simulations of different solute diffusion coefficients in liquid are similar to those of different velocities and the transition from lamellar eutectic to rod-like takes place only in a certain range of each parameter. All of the simulated results are in agreement with the experiments qualitatively.

Keywords : lamellar-rod transition , multi-phase field , numerical simulation

PACC : 8140 , 8110D , 8130F

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

[†] E-mail : jchwang@nwpu.edu.cn