

# 偏晶合金液-液相分离的格子玻尔兹曼方法模拟\*

周丰茂 孙东科 朱鸣芳<sup>†</sup>

(东南大学江苏省先进金属材料高技术研究重点实验室, 南京 211189)

(2009 年 7 月 29 日收到; 2009 年 9 月 7 日收到修改稿)

本文建立了一个模拟在弥散相液滴的扩散长大、碰撞凝并和 Ostwald 熟化等因素的作用下偏晶合金液-液相分离过程的二维格子玻尔兹曼方法 (lattice Boltzmann method, LBM) 模型. 该模型结合了 Shan-Chen 的两相流模型和 Qin 的介观粒子相互作用势模型的优点, 并在 LB 演化方程中引入了反映相变的源项. 应用该模型模拟研究了偏晶合金液-液相分离过程中单液滴的生长、两液滴的合并和多液滴的生长规律. 结果表明在两液相区中第二相单个液滴的生长是一个通过扩散从非平衡态到平衡态过渡的过程. 两液滴合并过程的模拟结果表明表面张力会影响液滴的合并速度, 模拟结果与理论预测的趋势相一致. 多液滴生长过程的模拟结果表明液滴之间的碰撞凝并作用和 Ostwald 熟化会对液-液相分离过程产生重要影响.

**关键词:** 偏晶合金, 液-液相分离, 格子玻尔兹曼方法

**PACC:** 6470J, 8110F, 6125M

## 1. 引 言

偏晶合金具有独特的物化性能和良好的工艺性能, 被广泛应用于金属自润滑材料、电接触材料和超导材料等方面. 由于这类合金的二元相图中存在一个两液相不混溶区, 在不混溶区内初始液相会很快形成不同组元富集的两液相. 因此, 在常规的铸造条件下, 偏晶合金极易产生重力偏析甚至组元分层现象. 这个问题严重限制了该类合金的工业应用. 迄今, 通过在重力和微重力条件下大量的理论和实验研究<sup>[1,2]</sup>, 人们发现了除重力之外影响该类合金的液-液相分离动力学的诸多因素<sup>[3-5]</sup>, 但对这些因素的各自作用程度尚不清楚. 近年来, 随着数值模拟技术的迅速发展, 人们可以通过对偏晶合金凝固过程的模拟来研究偏晶合金显微组织演化过程中的内在机理, 为控制和改善偏晶合金的凝固组织提供依据. 例如, 赵九洲等<sup>[6]</sup>建立数学模型, 对 Al-Pb 偏晶合金在单向冷却条件下的液-液相变过程进行了模拟研究. 崔红保和郭景杰等<sup>[7]</sup>运用相场法对 Cu-Pb 过偏晶合金的颗粒生长和 Ostwald 熟化进行了模拟研究.

格子玻尔兹曼方法 (lattice Boltzmann method, LBM) 是上世纪 80 年代末出现并迅速发展起来的一种新的流体数值计算方法. 具有边界容易处理、计算效率高、本质并行等独特优点. 因此, LBM 自出现之日就受到了众多领域的学者的广泛关注, 并已在湍流、多相流、多孔介质流、渗流等领域得到了成功的应用<sup>[8-13]</sup>. 近年来, LBM 在凝固领域也逐渐得到应用, 已有学者将 LBM 应用于对流作用下的枝晶生长和泡沫金属凝固过程等方面的模拟研究<sup>[14-17]</sup>. 但迄今为止, 还未见将 LBM 应用于偏晶合金凝固过程的数值模拟领域的文献报道. 本文建立了一个通过宏观热力学衍生粒子间相互作用势的二维 LBM 模型, 该模型能够描述在弥散相液滴的扩散长大、碰撞凝并和 Ostwald 熟化等因素的作用下, 偏晶合金液-液相分离的组织演变过程. 应用该模型对偏晶合金液-液相分离过程中单液滴的生长、两液滴的合并和多液滴的生长规律进行了模拟研究.

## 2. 模型与算法

### 2.1. 两相流动的 LBM 模型

偏晶合金液-液相分离过程主要包括弥散相液

\* 国家自然科学基金 (批准号: 50671025), 江苏省自然科学基金 (批准号: BK2006105) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20070286021) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: zhmf@seu.edu.cn

滴形核、长大、粗化、碰撞凝并和两液相分离等现象. 本文工作暂不考虑弥散相液滴的形核, 而主要针对液滴的生长过程进行模拟研究. 在 Shan-Chen 的两相流模型<sup>[18,19]</sup>基础上进行改进, 在两相粒子的时空演化方程中引入相变源项  $\omega_i \Delta \rho^\sigma$ . 采用 LBGK (BGK: Bhatnaga-Gross-Krook)-D2Q9 方法求解如下的两相粒子 LB 演化方程:

$$f_i^\sigma(\mathbf{x} + \mathbf{e}_i \Delta t, t + \Delta t) - f_i^\sigma(\mathbf{x}, t)$$

$$\mathbf{e}_i = \begin{cases} (0, 0), & i = 0, \\ (\cos[(i-1)\pi/2], \sin[(i-1)\pi/2])c, & i = 1-4, \\ (\cos[(2i-9)\pi/4], \sin[(2i-9)\pi/4])\sqrt{2}c, & i = 5-8, \end{cases} \quad (2)$$

式中,  $c = \Delta x / \Delta t$  为格子速度,  $\Delta x$  为空间步长,  $\Delta t$  为时间步长.

(1) 式中平衡分布函数  $f_i^{\sigma(\text{eq})}(\mathbf{x}, t)$  由各相的密度  $\rho^\sigma$  和平衡态速度  $\mathbf{u}^\sigma$  所确定:

$$f_i^{\sigma(\text{eq})}(\mathbf{x}, t) = \omega_i \rho^\sigma [1 + 3(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u}^\sigma) / c^2 + 4.5(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u}^\sigma)^2 / c^4 - 1.5(\mathbf{u}^\sigma)^2 / c^2], \quad (3)$$

式中, 权重系数  $\omega_0 = 4/9$ ,  $\omega_{1-4} = 1/9$ ,  $\omega_{5-8} = 1/36$ . 流体各相的实际密度和两相流体的平均速度可由粒子分布函数求出:

$$\rho^\sigma = \sum_{i=0}^8 f_i^\sigma(\mathbf{x}, t), \quad (4)$$

$$\rho \mathbf{u} = \sum_{\sigma=1}^2 \sum_{i=0}^8 \mathbf{e}_i f_i^\sigma(\mathbf{x}, t), \quad (5)$$

其中  $\rho$  表示两相流体的整体密度,

$$\rho = \sum_{\sigma=1}^2 \sum_{i=0}^8 f_i^\sigma(\mathbf{x}, t).$$

无量纲松弛时间  $\tau^\sigma$  与流体各相的运动黏度  $\nu^\sigma$  相关, 即

$$\nu^\sigma = c^2 \Delta t (2\tau^\sigma - 1) / 6. \quad (6)$$

## 2.2. $L_1/L_2$ 两液相之间的相互作用势

要使液-液两相分离, 就必须考虑存在于不同的流体粒子团之间的非局部相互作用力  $\mathbf{F}^\sigma$ , 不同相间的相互作用力源于一个相互作用势,

$$V_{\sigma\bar{\sigma}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') = \eta G_{\sigma\bar{\sigma}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \psi^\sigma(\mathbf{x}) \psi^{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}'), \quad (7)$$

式中,  $\bar{\sigma}$  表示与  $\sigma$  相对应的另外一相;  $\psi^\sigma(\mathbf{x}) = \psi^\sigma(\rho^\sigma(\mathbf{x}))$ ,  $\psi^{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}) = \psi^{\bar{\sigma}}(\rho^{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}'))$  分别是  $\mathbf{x}$  处的第  $\sigma$  相与位置  $\mathbf{x}' = \mathbf{x} + \mathbf{e}_i$  处的第  $\bar{\sigma}$  相的有效密度;  $\eta$  为符号函数, 其具体定义将在后面介绍;  $G_{\sigma\bar{\sigma}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}')$  是格林函数, 其表达式如下:

$$= -\frac{1}{\tau^\sigma} [f_i^\sigma(\mathbf{x}, t) - f_i^{\sigma(\text{eq})}(\mathbf{x}, t)] + \omega_i \Delta \rho^\sigma,$$

$$\sigma = 1, 2, \quad i = 0, 1, \dots, 8, \quad (1)$$

式中,  $\sigma = 1$  与  $\sigma = 2$  分别表示偏晶合金液-液相分离过程中的  $L_1$  液相和  $L_2$  液相;  $f_i^\sigma(\mathbf{x}, t)$  为  $\sigma$  相的粒子分布函数;  $f_i^{\sigma(\text{eq})}(\mathbf{x}, t)$  为相应的平衡分布函数;  $\Delta \rho^\sigma$  为在一个时间步长之内由相变引起的  $\sigma$  相粒子密度的增量;  $\mathbf{e}_i$  为粒子在  $i$  方向的运动速度, 定义为

$$G_{\sigma\bar{\sigma}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') = \begin{cases} 0, & |\mathbf{x} - \mathbf{x}'| > \sqrt{2}c, \\ \omega_i G, & |\mathbf{x} - \mathbf{x}'| = c \\ & \text{或 } |\mathbf{x} - \mathbf{x}'| = \sqrt{2}c, \end{cases} \quad (8)$$

式中,  $G$  是控制相互作用强度的参数, 其值与表面张力相关.

在本模型中不考虑重力的影响, 于是在  $\mathbf{x}$  处的第  $\sigma$  相受到的作用力总和为

$$\begin{aligned} \mathbf{F}^\sigma(\mathbf{x}) &= \sum_{\mathbf{x}'} V_{\sigma\bar{\sigma}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') (\mathbf{x}' - \mathbf{x}) \\ &= \eta \psi^\sigma(\mathbf{x}) G_{\sigma\bar{\sigma}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \sum_{i=1}^8 \psi^{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}') \mathbf{e}_i. \end{aligned} \quad (9)$$

各相之间的相互作用力将会使粒子的动量发生变化. 基于第二相液滴长大的物理过程, (3) 式中各相的平衡态速度  $\mathbf{u}^\sigma$  可由下式计算得出<sup>[19]</sup>:

$$\rho^\sigma(\mathbf{x}) \mathbf{u}^\sigma(\mathbf{x}) = \rho^\sigma(\mathbf{x}) \mathbf{u}(\mathbf{x}) + \tau^\sigma \mathbf{F}^\sigma. \quad (10)$$

Shan-Chen 的两相流模型<sup>[18,19]</sup>描述的是纯理想流体. 而 Qin 的介观粒子相互作用势模型<sup>[20]</sup>中引进了宏观热力学函数, 比 Shan-Chen 模型更接近于实际流体. 因此, 本文的模型结合了这两个模型的优点. 根据 Qin 的介观粒子相互作用势模型<sup>[20]</sup>, 第  $\sigma$  相的有效密度可以通过下式计算得到:

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2} \eta \psi^\sigma(\rho^\sigma)^2 \\ &= \left( \rho^\sigma \frac{\partial g[\rho^\sigma, T]}{\partial \rho^\sigma} - g[\rho^\sigma, T] \right) / RT - \rho^\sigma, \end{aligned} \quad (11)$$

式中, 符号函数  $\eta$  可以通过上式计算得到: 当上式等号右边为负值时,  $\eta = -1$ ; 反之,  $\eta = 1$ .  $g[\rho^\sigma, T]$  为  $\sigma$  相流体的自由能密度函数, 其表达式如下:

$$g[\rho^\sigma, T] = \rho RT \ln \left( \frac{\rho^\sigma}{1 - \rho^\sigma b} \right) - a(\rho^\sigma)^2, \quad (12)$$

其中  $a, b$  为常数, 可通过偏晶合金两液相分离曲线的临界点来确定的. 在图 1 所示的  $A-B$  偏晶合金两液相分离相图中, 临界温度  $T_c$  所对应的点即为临界点. 根据两液相分离曲线的特点可知临界点 (即临界温度  $T_c$  和该点处的成分所对应的密度  $\rho_c$ ) 既是自由能曲线的最低点, 又是自由能曲线由下凸变为上凸的拐点<sup>[21]</sup>. 在临界点处对自由能函数求一阶和二阶导数, 联立解方程可求得  $a = 6.5, b = 0.3$ .

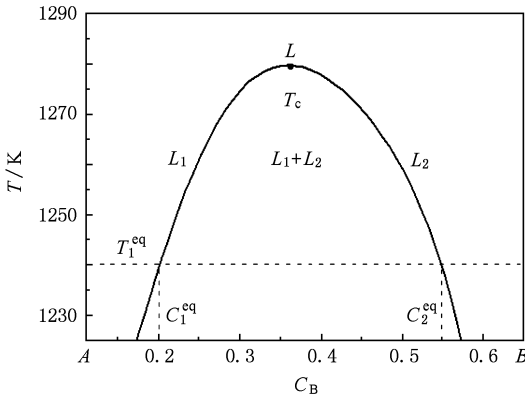


图 1  $A-B$  偏晶合金两液相分离相图

### 2.3. 浓度场的数值计算

本文同样采用 D2Q9 的 LBM 模型计算浓度场, 其演化方程为

$$\begin{aligned} g_i(\mathbf{x} + \mathbf{e}_i \Delta t, t + \Delta t) - g_i(\mathbf{x}, t) \\ = -\frac{1}{\tau_D} [g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)], \\ i = 0, 1, \dots, 8, \end{aligned} \quad (13)$$

式中,  $g_i(\mathbf{x}, t)$  表示浓度分布函数;  $\tau_D$  表示浓度场计算的无量纲松弛时间, 与溶质的扩散系数  $D$  相关,

$$D = c^2 \Delta t (2\tau_D - 1) / 6, \quad (14)$$

$g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)$  为浓度场的平衡分布函数, 即

$$\begin{aligned} g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t) = \omega_i C [1 + 3(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u}_c) / c^2 \\ + 4.5(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u}_c)^2 / c^4 \\ - 1.5(\mathbf{u}_c)^2 / c^2], \end{aligned} \quad (15)$$

其中, 权重系数  $\omega_i$  与 (3) 式中的相同;  $C$  表示局部浓度, 由浓度分布函数求出,  $C = \sum_{i=0}^8 g_i(\mathbf{x}, t)$ . (15) 式中的速度  $\mathbf{u}_c$  与通过流场计算得到的速度  $u$  和由溶质在各相中化学势梯度引起的粒子迁移速度有关, 即

$$C \mathbf{u}_c = \nabla \psi_c(\mathbf{x}), \quad (16)$$

式中,  $\psi_c(\mathbf{x})$  是浓度场的势函数, 与各流体相的密

度相关, 表示熔体组分之间的相互作用. 只要选择合适的势函数便可计算不同熔体之间的扩散. 根据 Qin 的介观粒子相互作用势模型可知  $\psi_c(\mathbf{x})$  满足如下形式:

$$\psi_c(\mathbf{x}) = \frac{A[1 - \phi(\mathbf{x})]^2}{1 - A[1 - \phi(\mathbf{x})]}, \quad (17)$$

式中,  $A$  为常数, 在本文的物性参数计算条件下取  $A = 0.028$ .  $\phi(\mathbf{x})$  表示流体各相在  $\mathbf{x}$  处的序参数, 其表达式如下:

$$\phi(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \left( \frac{\rho^2 - \rho^1}{\rho^2 + \rho^1} + 1 \right), \quad (18)$$

其中  $\rho^1$  和  $\rho^2$  分别表示液-液相分离过程中的  $L_1$  和  $L_2$  液相的密度.

### 2.4. 液-液相分离过程中的密度增量计算

(1) 式中由相变引起的各相粒子密度的增量  $\Delta \rho^\sigma$  与浓度、液滴的曲率有关, 其大小反映了相变速率的快慢. 根据偏晶合金液-液相分离过程的特点, 基于 Gibbs-Thomson 方程和相场基本理论, 可以得到计算液-液相变速率的公式

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{C_1 - C_1^{\text{eq}}}{C_2^{\text{eq}} - C_1^{\text{eq}}} \cdot \frac{\phi(1 - \phi)}{\delta} \cdot c \\ + \mu \Gamma \left[ \nabla^2 \phi - \frac{\phi(1 - \phi)(1 - 2\phi)}{\delta^2} \right], \end{aligned} \quad (19)$$

式中,  $\phi$  为序参数;  $C_1$  表示界面处局部基体  $L_1$  液相中的实际成分;  $C_1^{\text{eq}}$  和  $C_2^{\text{eq}}$  分别为液-液相变的平衡转变温度下  $L_1$  液相与  $L_2$  液相的平衡成分;  $\delta$  为界面厚度, 本文中  $\delta$  取 4 个单位空间步长;  $\mu$  为生长动力学系数;  $\Gamma$  为 Gibbs - Thomson 系数.

为了计算 (1) 式中密度增量  $\Delta \rho^\sigma$ , 由 (18) 式序参数的定义可以推出

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\rho^1 \partial \rho^2 / \partial t - \rho^2 \partial \rho^1 / \partial t}{(\rho^2 + \rho^1)^2}. \quad (20)$$

在液-液相分离过程中, 若发生相变, 其中一相的增加则意味着另一相的减少, 即

$$\partial \rho^2 / \partial t + \partial \rho^1 / \partial t = 0. \quad (21)$$

将 (21) 式代入 (20) 式中, 离散后可得

$$\Delta \rho^1 = -(\rho^2 + \rho^1) \Delta \phi = -\Delta \rho^2. \quad (22)$$

结合 (19) 式和 (22) 式就可求出 (1) 式中液-液相分离过程中各相的密度增量  $\Delta \rho^\sigma$ .

本文计算中所使用的物性参数为  $\nu^1 = 4.0 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $\nu^2 = 2.5 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $\rho^1 = 1.0 \times 10^3 \text{ kg}/\text{m}^3$ ,  $\rho^2 = 2.0 \times 10^3 \text{ kg}/\text{m}^3$ ,  $C_0 = 0.25$ ,  $C_1^{\text{eq}} = 0.20$ ,  $C_2^{\text{eq}} = 0.55$ ,  $T_1^{\text{eq}} = 1240 \text{ K}$ ,  $T_c = 1280 \text{ K}$ ,  $\rho_c = 1.22 \times 10^3$

$\text{kg/m}^3$ ,  $D = 6 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $\Gamma = 3.5 \times 10^{-7} \text{ m} \cdot \text{K}$ ,  $\mu = 2.0 \times 10^{-7} \text{ m}/(\text{s} \cdot \text{K})$ . 空间步长  $\Delta x = 2.0 \times 10^{-6} \text{ m}$ , 时间步长  $\Delta t = 2.0 \times 10^{-6} \text{ s}$ .

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. 单液滴的生长

首先,应用所建立的 LBM 模型模拟了偏晶合金在液-液相分离过程中单液滴的生长. 将计算区域划分成  $80 \times 80$  个均匀正方形网格. 计算区域四周采用

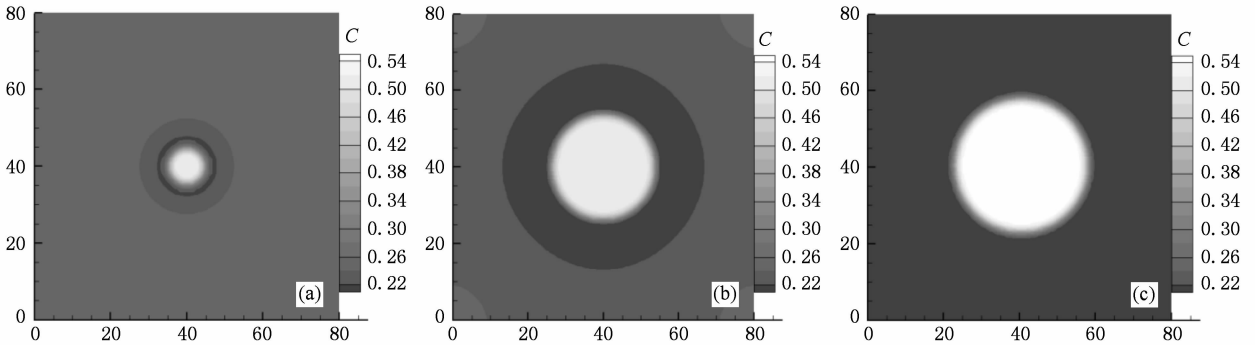


图2 模拟的偏晶合金单液滴的生长过程和浓度场随时间的变化( $T_1^{\text{eq}} = 1240 \text{ K}$ ,  $C_0 = 0.25$ ) (a)  $t = 600$ ; (b)  $t = 12000$ ; (c)  $t = 60000$

图3为对应于图2的单液滴生长过程中不同时刻的液滴浓度轮廓的变化. 从图3中可以看出在偏晶合金液-液相分离过程中,单液滴的生长过程是一个通过扩散从非平衡态到平衡态转变的过程. 在液滴生长的初始阶段,液滴界面前沿会形成扩散边界层,这个边界层的厚度较窄. 随着液滴的不断长大,扩散边界层的厚度也不断增大,并且液滴中的浓度低于平衡浓度  $C_2^{\text{eq}}$ , 如图3中  $t = 12000$  时的液滴浓度轮廓所示. 当基体中的溶质浓度接近于平衡浓度时,基体中的溶质趋于均匀化,最终达到  $L_1$  液相的平衡成分  $C_1^{\text{eq}}$ . 与此同时,液滴中的溶质浓度不断增大,最终达到  $L_2$  液相的平衡成分  $C_2^{\text{eq}}$ , 如图3中  $t = 60000$  时的液滴浓度轮廓所示.

#### 3.2. 两液滴的合并过程

为了验证 LBM 模型对液-液两相流模拟的合理性,应用所建立的模型模拟了偏晶合金两个液滴的合并过程. 液桥的形成与演化,分析了表面张力对合并速度的影响. 在划分为  $200 \times 200$  格子的计算区域中心位置水平放置了两个静止的液滴,它们之间的间距为 5 个单位空间步长,不考虑外力的作用. 两

周期性边界条件. 计算区域中各处的温度相同,始终保持为平衡转变温度  $T_1^{\text{eq}} = 1240 \text{ K}$ , 初始成分为  $C_0 = 0.25$ . 模拟开始时,在计算区域的中心放置一个成分为  $C = 0.48$  的形核液滴. 图2是偏晶合金在两液相不混溶区内的单液滴生长过程和浓度分布. 从图2中可以看出,液滴是通过吸收周围过饱和基体的溶质而长大的. 在生长的初始阶段,液滴的生长速度较快,如图2(a)和(b)所示. 当基体中的浓度接近于平衡浓度  $C_1^{\text{eq}}$  时,液滴的生长趋于缓慢. 同时基体中的溶质经过长时间的扩散,逐渐趋于均匀化,最终达到平衡成分. 此时,液滴停止生长.

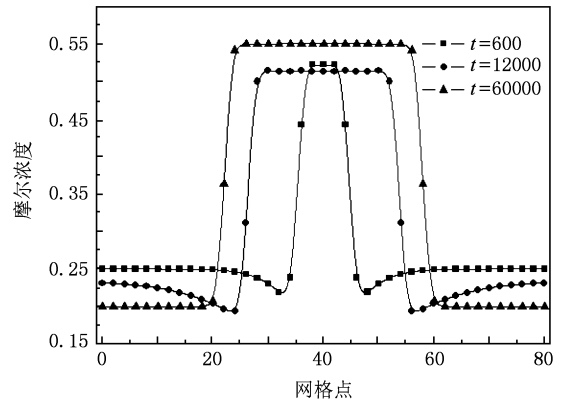


图3 对应于图2单液滴生长过程中液滴浓度轮廓的变化

个液滴的合并过程如图4所示. 两液相之间的相互作用力将会使粒子的动量发生变化,从而产生流场. 在这个流场的作用下,液滴的合并速度非常快,600个时间步长内两个液滴就合并成一个大液滴. 从图4(a)可以看出,当两个液滴接触后,在垂直方向上会形成较强的指向液滴外部的流场,而在其水平方向上会形成较弱的指向液滴内部的流场. 两液滴合并后所形成的新液滴会发生扰动,由于溶液的

黏性耗散作用,这个扰动将会随时间而不断衰减,直至消失,如图 4(b), (c) 和 (d) 所示.

从图 4(a) 可观察到,在合并的初期两个液滴中间会形成一个液桥,由于表面张力的作用,这个液桥会一直膨胀,最后形成一个液滴. Eggers 等人<sup>[22]</sup> 通过理论与数值分析,预测表面张力对液滴的合并速度有影响.

为了研究表面张力对液滴合并的作用,在划分

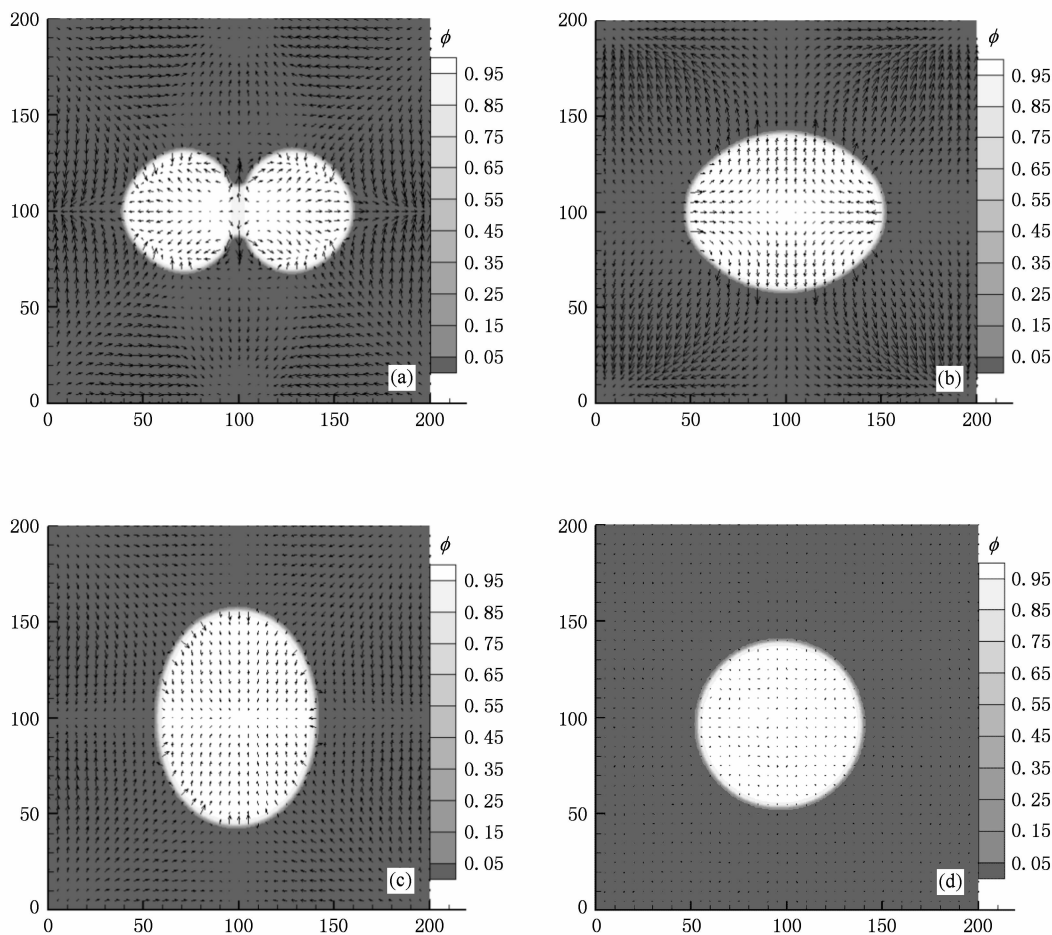


图 4 两个静止液滴的合并过程(图中为序参数  $\phi$  随时间的变化,  $T_1^* = 1240$  K,  $C_0 = 0.25$ ) (a)  $t = 310$ ; (b)  $t = 1400$ ; (c)  $t = 2930$ ; (d)  $t = 80000$

### 3.3. 液-液相分离过程中多液滴的生长

应用所建立的 LBM 模型模拟了偏晶合金液-液相分离过程中多液滴的生长行为. 将计算区域划分为  $200 \times 200$  个均匀正方形网格. 图 6 为在二维网格上选取的 300 个随机分布的形核液滴的生长形貌演化过程的数值模拟结果. 从图 6(a) 和 (b) 可以看出,在液-液相分离过程的初始阶段,区域中液滴的数量较多,液滴之间的间距较小,当两个或多个液滴相

为  $200 \times 200$  格子的计算区域中心位置水平放置了两个静止的液滴,其间距为零,液滴的初始半径设为  $R_0 = 25$  个单位空间步长. 通过改变控制表面张力的参数  $G$ ,模拟分析了表面张力对合并速度的影响. 图 5 为在不同  $G$  的作用下,液桥宽度  $R_b$  达到液滴初始半径  $R_0$  所需要的时间. 由图 5 可知表面张力系数  $G$  越大,  $R_b$  达到  $R_0$  所需的时间越短,即液滴合并的速度越快,这一趋势符合 Eggers 等人<sup>[22]</sup> 的理论预测.

接触时,在表面张力的作用下,它们会合并成一个较大的液滴,从而减少表面积. 因此,在这一阶段液滴主要通过碰撞凝并而长大. 随着液滴的不断长大,液滴的数量不断减少,液滴之间的间距不断增大,液滴之间的碰撞凝并概率减小. 此时,在生长的液滴之间会产生另外一种相互作用——Ostwald 熟化. 根据非对称液滴的 Gibbs-Thomson 理论,半径大的液滴会以消耗周围半径小的液滴维持自身的长大,如图 6(c), (d) 和 (e) 所示. 最后,经过长时间

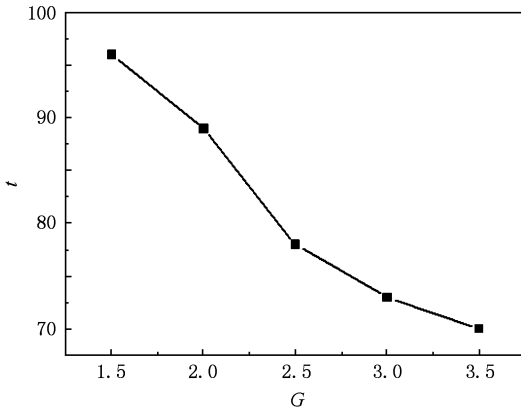


图5 液桥宽度  $R_b$  达到液滴初始半径  $R_0$  所需时间  $t$  与表面张力系数  $G$  的关系

的扩散,  $L_1$  和  $L_2$  两液相都达到平衡状态, 如图 6(f) 所示. 图 7 为液-液相分离过程中  $L_2$  液相体积分数随时间的变化. 由图 7 可见,  $L_2$  液相的体积分数随

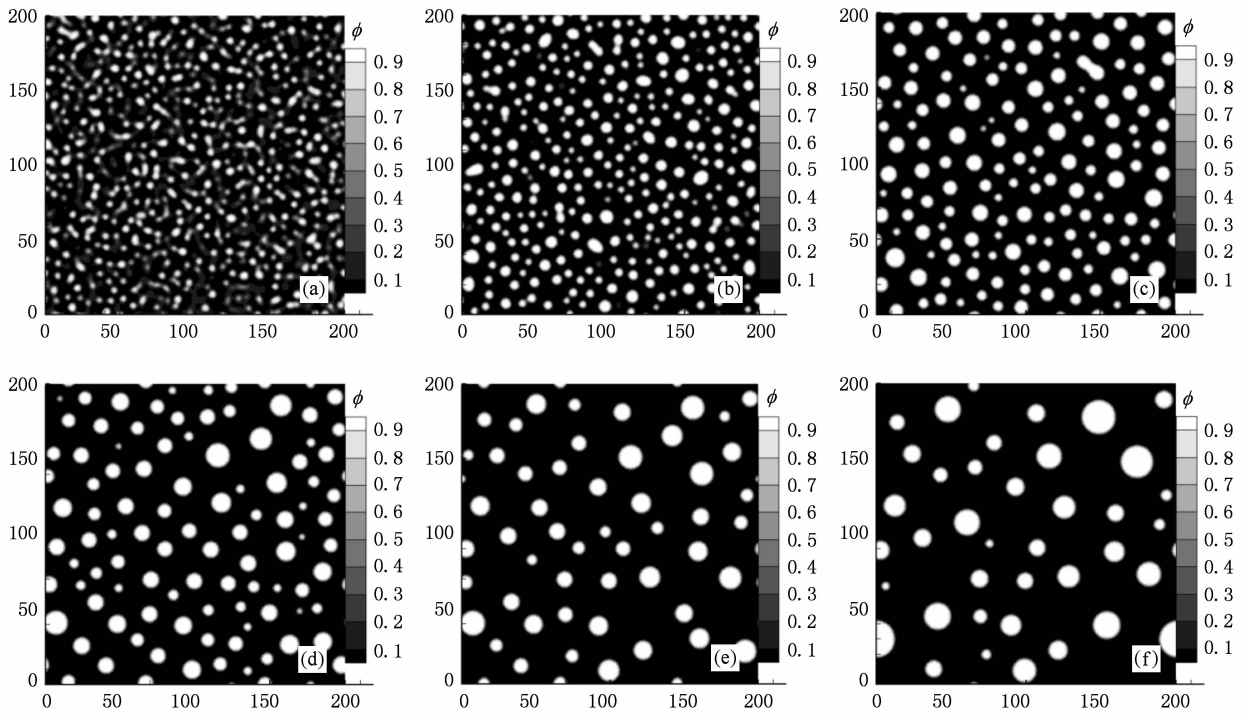


图6 液-液相分离过程中多液滴的生长(图中为序参数  $\phi$  的分布随时间的变化,  $T_1^q = 1240$  K,  $C_0 = 0.25$ ) (a)  $t = 50$ ; (b)  $t = 200$ ; (c)  $t = 500$ ; (d)  $t = 20000$ ; (e)  $t = 64000$ ; (f)  $t = 100000$

## 4. 结 论

1. 在结合 Shan-Chen 的两相流模型和 Qin 的介观粒子相互作用势模型的基础上, 在粒子分布函数

时间而增大, 在初始阶段增大较快, 随后趋缓. 当两液相分离达到平衡状态时停止增长, 此时  $L_2$  液相的体积分数等于  $C_0$  成分的合金在  $T_1^q$  温度下通过杠杆定律计算所得到的理论值.

图 8 为对应于图 6 的液-液相分离过程中液滴尺寸分布随时间的变化. 在初始阶段, 液滴的尺寸接近于对称分布, 且尺寸分布的峰值位于液滴半径较小的区域. 随后, 大量液滴通过碰撞凝并而长大, 使液滴尺寸分布的峰值向液滴半径较大的区域移动, 尺寸分布仍然接近于对称分布, 如图 8(b) 所示. 在生长和粗化的后期, Ostwald 熟化对液滴的生长起主要作用, 液滴的生长趋势分为两种情况: 一部分液滴粗化长大, 形成半径更大的液滴; 而另一部分液滴不断收缩, 液滴尺寸呈双峰分布形式, 如图 8(c) 所示. 随着时间的演化, 半径较小处的峰值会逐渐消失, 最终液滴尺寸呈单峰分布形式, 如图 8(d) 所示.

的 LB 演化方程中增加反映相变的源项, 建立了一个能描述在弥散相液滴的扩散长大、碰撞凝并和 Ostwald 熟化等因素的作用下偏晶合金液-液相分离过程的二维 LBM 模型.

2. 应用所建立的 LBM 模型模拟了偏晶合金单

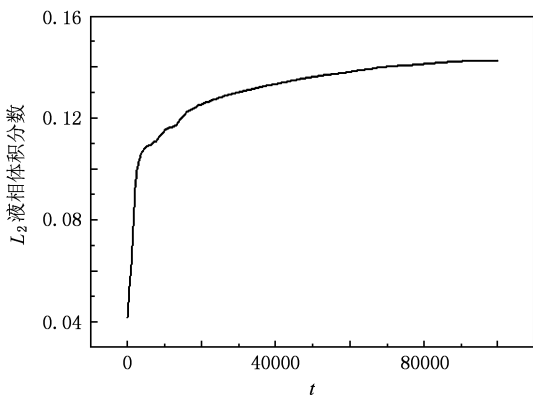


图7  $L_2$  液相体积分数随时间的变化

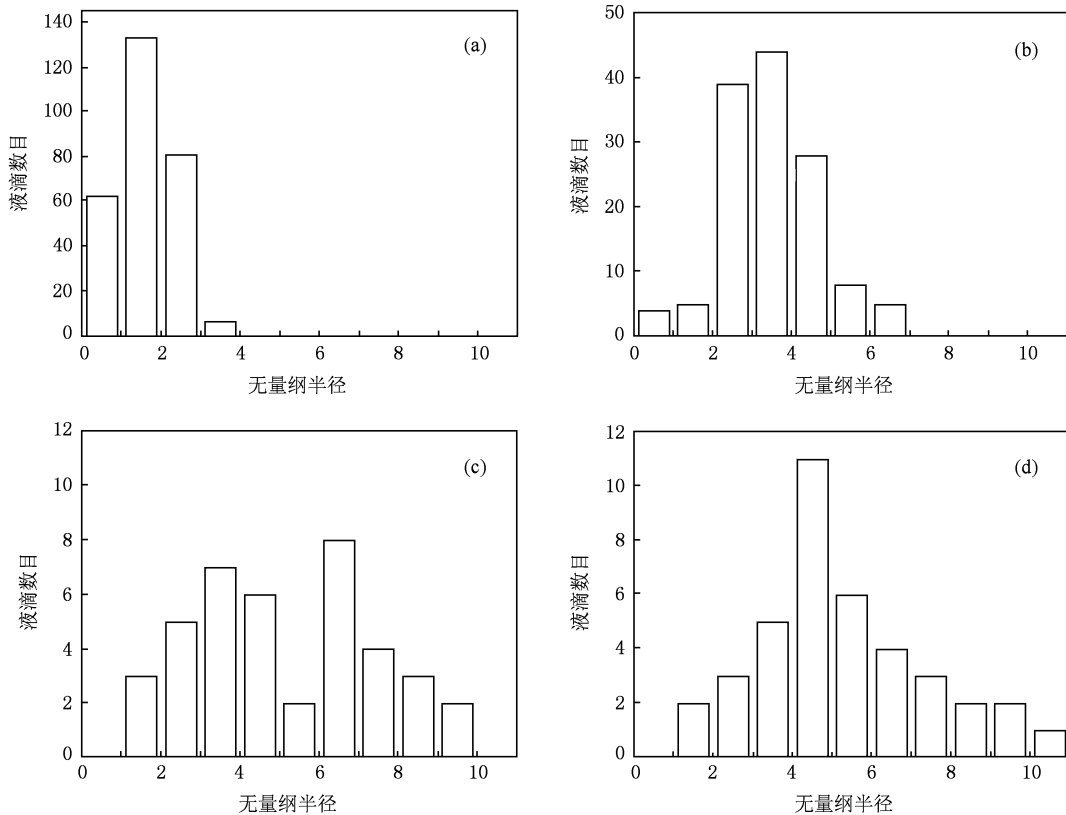


图8 液-液相分离过程中不同时刻的液滴尺寸分布 (a)  $t=200$ ; (b)  $t=5000$ ; (c)  $t=64000$ ; (d)  $t=100000$

个液滴的生长过程. 结果表明,在两液相区中,第二相液滴的生长是一个通过扩散从非平衡态到平衡态转变的过程.

3. 模拟了偏晶合金两个液滴的合并过程. 结果表明,表面张力会影响液滴的合并速度. 表面张力系数越大,液滴合并的速度越快. 模拟结果与理论预测的趋势相一致.

4. 对偏晶合金液-液相分离过程中多液滴的生长行为和液滴的尺寸分布随时间的变化进行了模拟研究. 发现液滴之间的碰撞凝并作用和 Ostwald 熟化影响了液-液相分离过程和液滴的尺寸分布. 在长大初期液滴的碰撞凝并起主要作用,而在后期主要受 Ostwald 熟化机理所影响.

[1] Li H L, Zhao J Z 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 241902  
 [2] Huang Q, Luo X H, Li Y Y 2005 *Adv. Space Res.* **36** 86  
 [3] Ratke L, Dieffenbach S 1995 *Mater. Sci. Eng. R* **15** 263  
 [4] Fan Z, Ji S, Zhang J 2001 *Mater. Sci. Technol.* **17** 837  
 [5] Zhai W, Wang N, Wei B B 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2353 (in Chinese) [翟薇、王楠、魏柄波 2007 物理学报 **56** 2353]

[6] Zhao J Z, Hu Z Q, Ratke L 2004 *Acta Metall. Sin.* **40** 27 (in Chinese) [赵九州、胡壮麒、Ratke L 2004 金属学报 **40** 27]  
 [7] Cui H B, Guo J J, Su Y Q, et al 2007 *Acta Metall. Sin.* **43** 907 (in Chinese) [崔红保、郭景杰、苏彦庆等 2007 金属学报 **43** 907]  
 [8] Chen S, Doolen G D 1998 *Annu. Rev. Fluid Mech.* **30** 329

- [9] Raabe D 2004 *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* **12** R13
- [10] Wang H L, Chai Z H, G Z L 2009 *Chin. J. Comput. Phys.* **26** 389 (in Chinese) [王华龙、柴振华、郭照立 2009 计算物理 **26** 389]
- [11] Chai Z H, Guo Z L, Shi B C 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 104913
- [12] Xu Y S, Li H B, Fang H P, Huang G X 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 773 (in Chinese) [许友生、李华兵、方海平、黄国翔 2004 物理学报 **53** 773]
- [13] Feng S D, Zhong L H, Gao S T, Dong P 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1238 (in Chinese) [冯士德、钟霖浩、高守亭、Dong Ping 2007 物理学报 **56** 1238]
- [14] Sun D K, Zhu M F, Pan S Y, Raabe D 2009 *Acta Mater.* **57** 1755
- [15] Sun D K, Zhu M F, Yang C R, Pan S Y, Dai T 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S285 (in Chinese) [孙东科、朱鸣芳、杨朝蓉、潘诗琰、戴挺 2009 物理学报 **58** S285]
- [16] Wagner A J, Giraud L, Scott C E 2000 *Comput. Phys. Commun.* **129** 227
- [17] Yang Z L, Dinh T N, Nourgaliev R R, Sehgal B R 2001 *Int. J. Therm. Sci.* **204** 143
- [18] Shan X, Chen H 1993 *Phys. Rev. E* **47** 1815
- [19] Shan X, Chen H 1994 *Phys. Rev. E* **49** 2941
- [20] Qin R S 2006 *Phys. Rev. E* **73** 066703
- [21] Nishizawa T (written), Hao S M (translated) 2006 *Thermodynamics of Microstructure* (1st ed) (Beijing: Chemical Industry Press) p106 (in Chinese) [西泽泰二著, 郝士明译 2006 微观组织热力学(第一版)(北京:化学工业出版社)第106页]
- [22] Eggers J, Lister J R, Stone H A 1999 *J. Fluid. Mech.* **401** 293

## Lattice Boltzmann modelling of liquid-liquid phase separation of monotectic alloys<sup>\*</sup>

Zhou Feng-Mao, Sun Dong-Ke, Zhu Ming-Fang<sup>†</sup>

(*Jiangsu Key Laboratory for Advanced Metallic Materials of Southeast University, Nanjing 211189, China*)

(Received 29 July 2009; revised manuscript received 7 September 2009)

### Abstract

A two-dimensional (2D) lattice Boltzmann method (LBM) model was developed to simulate liquid-liquid phase separation of monotectic alloys, which is controlled by the diffusive growth, the collisions and coagulations, and the Ostwald ripening of the minority liquid droplets. The present model combines the features of the multiphase flow model proposed by Shan-Chen and the mesoscopic interparticle potentials developed by Oin. In addition, a source term is introduced in the LB evolution equations to account for the phase transformation. The proposed LBM model was applied to simulate single droplet growth, coagulation of two droplets and multi-droplet growth during the liquid-liquid phase separation process of a monotectic alloy. The simulation shows that the single droplet growth in the two-liquid phase is controlled by diffusion and that the initial nonequilibrium composition approaches to equilibrium. The coagulation velocity of two droplets is influenced by surface tension, which is in accordance with the trend of the analytical prediction. It is found that the liquid-liquid phase separation process is obviously impacted by the collisions and coagulations and the Ostwald ripening of the droplets.

**Keywords:** monotectic alloy, liquid-liquid phase separation, lattice Boltzmann method

**PACC:** 6470J, 8110F, 6125M

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50671025), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province, China (Grant No. BK2006105), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20070286021).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: zhmf@seu.edu.cn