

对流作用下枝晶形貌演化的数值模拟和实验研究*

石玉峰 许庆彦[†] 柳百成

(清华大学机械工程系, 先进成形制造教育部重点实验室, 北京 100084)

(2010年12月16日收到; 2011年7月27日收到修改稿)

合金凝固过程中存在于枝晶尖端液相区的强制对流和自然对流均能改变溶质扩散层厚度, 从而会对枝晶形貌产生较大影响. 在元胞自动机模型基础上, 耦合液体流动方程、热传导方程和溶质对流扩散方程, 建立了新的计算微观组织演化的数值模型, 并利用该模型研究了强制对流和自然对流对枝晶生长的影响. 三维数值模拟结果再现了强制对流作用下等轴枝晶的生长过程, 揭示了强制对流对枝晶生长速率和尖端半径的影响特点. 同时利用该模型模拟了 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液定向凝固过程中自然对流对柱状晶生长的影响, 并采用相应的实验进行验证. 模拟结果与实验结果符合良好, 从而证明该模型是可靠的, 可推广到实际合金系中.

关键词: 元胞自动机, 对流, $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液, 定向凝固

PACS: 61.30.-v, 81.10.Aj

1. 引言

液相流动对合金凝固微观组织的影响是凝固过程中广泛存在的现象, 而枝晶是合金凝固过程中常见的组织形貌, 在枝晶形成过程中考虑液相流动的影响是凝固科学一个重要的研究课题. Trivedi 等^[1]研究了不同凝固速率和温度梯度情况下, Al-Cu 合金试样定向凝固过程中的液相流动对平界面、胞状晶和树枝晶生长的影响, 发现液相流动可以抑制平界面向胞状晶的转变, 同时也增大了胞枝晶转变的临界速度. 近些年来随着相场 (PF) 模型和元胞自动机 (CA) 模型在枝晶生长模拟方面的应用不断深入, 数值模拟方法预测不同参数对枝晶形貌的影响取得了很多新进展. Lu 等^[2]使用 PF 模型模拟了纯物质过冷熔体中三维自由等轴枝晶在外加流场作用下的生长过程, 其中流场方程和温度场方程的计算网格尺寸是 PF 网格的两倍, 模拟结果表明迎流侧枝晶尖端半径和速度是外加流动速度、过冷度、晶体各向异性以及 Prandtl 数的函数. Steinbach^[3]使用 PF 模型, 模拟了 Al-Cu 合金定向凝固过程中溶质浮升力对流对柱状晶一次臂间距的影响. Wang 等^[4]采用 CA 模型, 在不考虑液体对流作用情况下

模拟了不同抽拉速度对镍基高温合金定向凝固过程中的一次臂间距的影响. 单博炜等^[5]使用 CA 模型, 模拟了抽拉速度和种晶数目的变化对丁二腈-2.5% 乙醇定向凝固一次臂间距的影响. Shin 等^[6]在 CA 模型中考虑了强制对流对枝晶形貌的影响, 模拟结果再现了迎流生长现象. 郭大勇等^[7]使用 CA 方法结合合金凝固过程动量和质量传输, 模拟了 Fe-C-Si 三元合金枝晶臂的生长、粗化过程, 以及凝固过程熔体流动对 Fe-C-Si 合金枝晶形貌的影响. Li 等^[8]在 CA 模型中考虑强制对流, 模拟了 Fe-C 合金在等过冷条件下单个枝晶的生长过程, 结果表明枝晶迎流侧生长较快. 文献[9, 10]将 CA 模型与动量和溶质传输的数值计算结合起来, 模拟了二维条件下 Al-Cu 合金单枝晶和多枝晶在强制对流以及自然对流条件下的枝晶生长规律, 再现了二维条件下枝晶尖端迎流侧快速生长以及背流侧受到抑制的现象.

为了研究液体流动对合金凝固过程等轴枝晶形貌演化以及定向凝固过程柱状晶生长过程的影响, 本文在总结以往模型的基础上, 将液体流动 Navier-Stokes 方程、传热方程、溶质对流扩散方程和 CA 模型结合起来, 建立了新的计算微观组织演化的改进的元胞自动机 (MCA) 模型. 该模型可以模拟

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2005CB724105, 2011CB706801)、国家自然科学基金 (批准号: 10477010, 51171089) 和国家高技术研究发展计划 (批准号: 2007AA04Z141) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: scjxyq@tsinghua.edu.cn

强制对流对三维等轴枝晶尖端生长速率和尖端半径大小的影响;同时该模型考虑了热溶质自然对流对定向凝固过程中柱状晶生长的影响,能够获得自然对流条件下一次臂间距的最大值和最小值范围.为了验证本模型的正确性,本文设计了 NH₄Cl-H₂O 溶液透明合金定向凝固实验台,借助图像原位可视化技术,实时观察 NH₄Cl-H₂O 溶液柱状晶生长过程.该实验装置属低温凝固系统,表面张力对流微弱,起主要影响作用的是热溶质自然对流,获得的实验结果和模拟结果符合较好.

2. 实 验

NH₄Cl-H₂O 溶液的透明性和树枝晶的半透明性能够形成较明显的对比,另外 NH₄Cl-H₂O 溶液的熔化潜热与合金接近且结晶温度较低,可直接观察其凝固过程,故本文使用 NH₄Cl-H₂O 溶液进行定向凝固过程的实验验证.

图 1 所示是 NH₄Cl-H₂O 溶液的相图^[11],其中 w 为溶质 H₂O 的溶质成分(质量分数).当 NH₄Cl-H₂O 溶液温度下降到液相线温度 T_L 以下,初生相(NH₄Cl)开始从液相中析出,凝固前沿不断排出 H₂O 溶质,凝固界面前沿出现 H₂O 溶质富集现象,若温度降低到共晶温度 T_e ,则出现共晶现象(NH₄Cl + 冰).

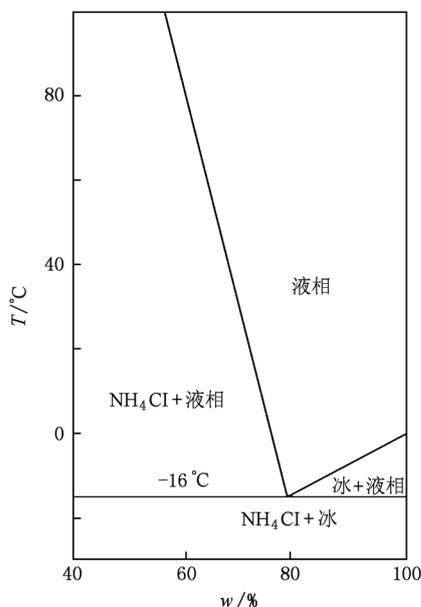


图 1 NH₄Cl-H₂O 溶液相图^[11]

NH₄Cl-H₂O 溶液属于低温凝固过程,故而可认为热物性参数不随温度变化,本文选取 w 为 74% 的

NH₄Cl-H₂O 溶液,液相不可压缩,在计算中所使用的热物性参数的取值^[11-13]如表 1 所列.

表 1 NH₄Cl-74% H₂O 溶液热物性参量取值^[11-13]

参 量	取 值
导热系数 $\lambda / \text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	0.393
质量定压热容 $c_p / \text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	3249
密度 $\rho / \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	1078
热扩散系数 $\alpha_T / \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	1.12×10^{-7}
液相溶质扩散系数 $D_L / \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	4.8×10^{-9}
熔化潜热 $\Delta H / \text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$	3.138×10^5
动力黏度 $\mu / \text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	1.3×10^{-3}
运动黏度 $\nu / \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	1.21×10^{-6}
热膨胀系数 β_T / K^{-1}	3.832×10^{-4}
溶质膨胀系数 β_C	2.57×10^{-3}
溶质平衡分配系数 k_0	0.30
Gibbs-Thomson 系数 Γ / Km	5.0×10^{-8}
表面能各向异性系数 γ	0.019
液相线温度 T_L / K	288
共晶温度 T_e / K	257.75
初始溶质成分 C_0	74%
共晶成分 C_e	80.3%

NH₄Cl-H₂O 溶液定向凝固实验装置如图 2 所示.图 2(a)的装置水平放置,冷端热端固定,为获得均匀稳定的定向凝固温度梯度,在装置侧壁和底部覆盖绝热材料,形成绝热边界,可实时观察透明合金定向凝固柱状晶生长过程.试样厚度仅为 0.5 mm,而试样盒的盛液室长为 40 mm,宽为 20 mm,溶液厚度与盛液室的长和宽相比很小,因此认为凝固过程发生在二维平面区域.如图 2(b)所示,装置与水平面间的倾角 θ 可以调整,倾角过大会导致试样盒在装置中容易自行滑动,从而使抽拉速度难以准确控制,故设定倾角与水平面平行($\theta = 0^\circ$)到与水平面成 $\pm 10^\circ$ 的范围.由于厚度方向上温度和溶质成分较为均匀,故不考虑厚度方向上的自然对流,仅考虑重力矢量在试样盒二维平面上的分量所造成的自然对流.该装置不仅可以进行定向凝固实验,也可以在装置四壁设定相等的冷却温度,可观察等轴晶的长大过程.

图 3 为定向凝固和均匀冷却两种不同条件下观测到的 NH₄Cl-74% H₂O 溶液枝晶形貌,发现无论柱状晶还是等轴晶均具有 $\langle 100 \rangle$ 优先生长方向及四重对称特性,这与文献[11]的结果一致.

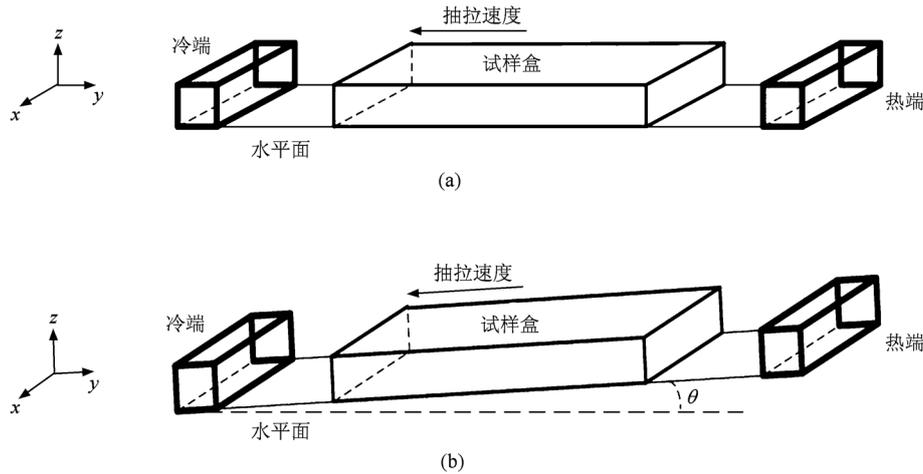


图2 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液定向凝固实验装置示意图 (a) 水平放置, (b) 倾斜放置

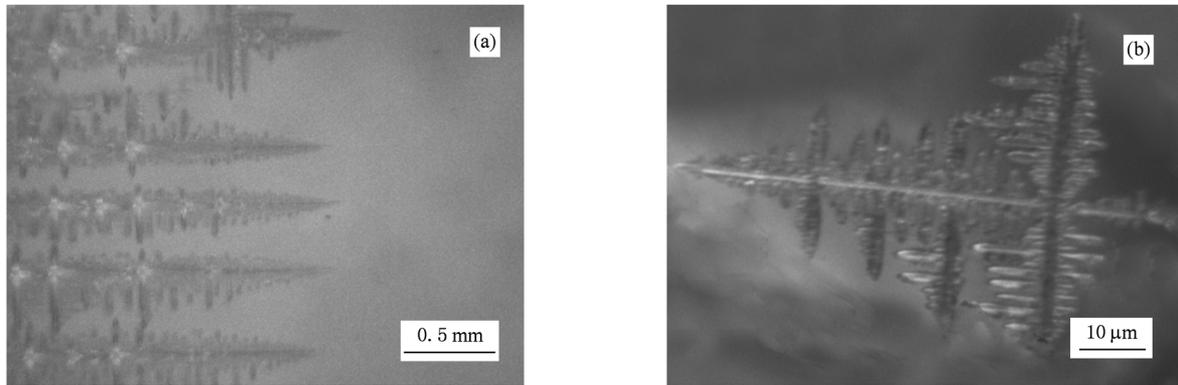


图3 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 透明合金实验获得的枝晶形貌 (a) 定向凝固, (b) 均匀冷却

3. 数学模型和数值计算方法

考虑液体流动的 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液凝固过程的数学模型包括流场、温度场、溶质场控制方程和枝晶生长模型.

3.1. 流场控制方程

$\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液的液体流动受连续性方程和动量方程控制,其中连续性方程为

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_L = 0, \quad (1)$$

动量方程为

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{V}_L}{\partial t} + \mathbf{V}_L \cdot \nabla \mathbf{V}_L \right) = -\nabla p + \nabla \cdot (\mu \nabla \mathbf{V}_L) - \rho \mathbf{B}, \quad (2)$$

式中 \mathbf{V}_L 是液相流动速度, p 是压力, $\rho \mathbf{B}$ 是浮升力项. 对于强制对流作用下的枝晶生长过程, 由于浮升力对流的大小相比外界强制对流基本可以忽略, 故而在强制对流计算中不考虑浮升力的影响. 对于自然对流作用下的定向凝固过程, 由于试样盒中液体厚度很薄, 定向凝固过程可以简化为二维区域, 则此时

$$\begin{aligned} T &= T(x, y, t), \\ C_s &= C_s(x, y, t), \\ C_L &= C_L(x, y, t), \\ \mathbf{V}_L &= (u, v), \\ \mathbf{B} &= (B_x, B_y), \end{aligned}$$

其中 u 和 v 分别为液相 x 方向和 y 方向的速度. 由于溶液厚度方向非常小, 故忽略厚度方向上的自然对流效应, 仅考虑二维区域溶质浮升力和热浮升力

影响. 根据 Boussinesq 假设, 将浮力项中的密度 ρ 简化为温度梯度和溶质成分梯度的线性函数, 可以得到自然对流的浮升力为^[10]

$$\begin{aligned} \rho B_x &= 0, \\ \rho B_y &= \rho g_y [\beta_c (C_L - C_0) + \beta_T (T - T_0)], \end{aligned} \quad (3)$$

式中 C_L 是液相溶质成分; C_0 是液相溶质初始成分; T 是液相温度; T_0 是液相初始温度; 根据图 2(b) 所示, g_y 是重力矢量在冷热端平面上的分量, 其大小为 $g \sin \theta$. 方程(3)中不考虑固相移动.

3.2. 温度场控制方程

在定向凝固实验过程中, 考虑冷端和热端热量传递所引起的热对流作用, 温度场满足下列方程:

$$\rho c_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{V}_L \cdot \nabla T \right) = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + \rho \Delta H \frac{df_s}{\partial t}, \quad (4)$$

式中 T 为元胞温度, 等式右边第二项是潜热释放的源项. 方程(4)中不考虑固相移动.

3.3. 溶质传输控制方程

$\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液中的固相溶质扩散方程为

$$\frac{\partial C_s}{\partial t} = \nabla \cdot (D_s \nabla C_s), \quad (5)$$

考虑对流扩散的影响, $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液液相溶质传输方程为

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} + \mathbf{V}_L \cdot \nabla C_L = \nabla \cdot (D_L \nabla C_L) + C_L(1 - k_0) \frac{df_s}{\partial t}, \quad (6)$$

式中 C_L 和 C_s 分别是液相和固相溶质成分, D_L 和 D_s 分别是液相和固相溶质扩散系数, k_0 为溶质平衡分配系数, f_s 是元胞固相分数. (6)式等号右端第二项的意义是在枝晶界面前沿初生相的固相分数增加的过程中不断排出溶质, 从而导致界面前沿溶质富集. 通常 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 溶液液相中溶质扩散系数比固相中大若干数量级, 因此可以忽略固相中的溶质扩散^[12].

3.4. 枝晶生长模型

由于凝固过程中的凝固速率与线性动力学系数相比很小, 从而动力学过冷一般很小, 故 MCA 模型一般忽略动力学过冷. 枝晶生长过程的尖端过冷度 ΔT 满足 Lipton-Glicksman-Kurz (LGK) 解析模型^[14,15], 其表达式如下:

$$\Delta T = \Delta T_l + \Delta T_c + \Delta T_R, \quad (7)$$

$$\Delta T_l = \frac{\Delta H}{c_p} I_v(Pe_l), \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \Delta T_c &= m_L (C_0 - C_L^*) \\ &= m_L C_0 \left[1 - \frac{1}{1 - (1 - k_0) I_v(Pe_c)} \right], \end{aligned} \quad (9)$$

$$\Delta T_R = \Gamma \bar{k} f(\varphi, \psi), \quad (10)$$

$$Pe_l = \frac{VR}{2\alpha_T}, \quad (11)$$

$$Pe_c = \frac{VR}{2D_L}, \quad (12)$$

$$R = \frac{\Gamma}{\sigma^*} \left[\frac{Pe_l \Delta H}{c_p} - \frac{Pe_c m_L C_0 (1 - k_0)}{1 - (1 - k_0) I_v(Pe_c)} \right]^{-1}, \quad (13)$$

式中 ΔT_l 是热过冷度, ΔT_c 是溶质过冷度, ΔT_R 是曲率过冷度, Pe_l 和 Pe_c 分别是热 Péclet 数和溶质 Péclet 数, $I_v(Pe)$ 是 Ivantsov 函数, σ^* 为稳定性系数, R 和 V 分别是枝晶尖端稳态半径和尖端稳态生长速率.

处于固液界面状态的 CA 元胞固液两相并存, 溶质满足局部平衡, 液相和固相的平衡浓度分别为^[16,17]

$$C_L^* = C_0 + [T^* - T_L + \Gamma \bar{k} f(\varphi, \psi)] / m_L, \quad (14)$$

$$C_s^* = k_0 C_L^*, \quad (15)$$

式中 T^* 为界面温度, \bar{k} 为固液界面曲率, $f(\varphi, \psi)$ 为界面能各向异性系数, C_L^* 和 C_s^* 分别为界面处液相和固相平衡溶质成分.

处于界面状态的 CA 元胞, 其曲率 \bar{k} 与自身以及周围 CA 元胞的凝固程度即固相分数相关, 需要用离散的方法计算, 本文采用如下公式计算其曲率^[18]:

$$\bar{k} = \left[1 - 2 \left(f_s + \sum_{i=1}^N f_s^i \right) / (N + 1) \right] / L, \quad (16)$$

式中 L 是 CA 元胞步长; N 为界面单元的周围邻居元胞, 二维和三维情况下 N 分别取 8 和 26.

为了描述 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 类合金的 $\langle 100 \rangle$ 取向, 其界面各向异性系数 $f(\varphi, \psi)$ 可表示为^[16,18]

$$f(\varphi, \psi) = 1 - 15\gamma \cos[4(\varphi - \psi)], \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \varphi &= \arccos(\partial f_s / \partial x [(\partial f_s / \partial x)^2 \\ &\quad + (\partial f_s / \partial y)^2]^{-1/2}), \end{aligned} \quad (18)$$

式中 γ 为界面能各向异性参数; φ 为固/液界面法线方向与水平方向夹角; ψ 为枝晶的优先生长方向, ψ

的计算方法可参见文献[18,19].

在固液界面推进过程中,界面元胞生长速度可表示为^[20,21]

$$\mathbf{v}_n C_L^* (1 - k) = -D_L \nabla C_L + D_S \nabla C_S. \quad (19)$$

二维条件下, $\mathbf{v}_n = (v_x, v_y)$, 从而可以得到界面元胞 x 方向和 y 方向的生长速率分别为

$$v_x C_L^* (1 - k) = -D_L \frac{\partial C_L}{\partial x} + D_S \frac{\partial C_S}{\partial x}, \quad (20)$$

$$v_y C_L^* (1 - k) = -D_L \frac{\partial C_L}{\partial y} + D_S \frac{\partial C_S}{\partial y}. \quad (21)$$

枝晶生长的实际物理过程是界面处于液固混合状态,也就是 $0 < f_s < 1$, 并且其固相分数不断增加,当 f_s 等于 1 时,元胞状态转变成固相并开始俘获周围的液相($f_s = 0$)邻居元胞. 界面元胞固相分数与界面生长速率的关系为^[20]

$$\Delta f_s = v_x \Delta t / \Delta x + v_y \Delta t / \Delta y - v_x v_y \Delta t^2 / (\Delta x \Delta y), \quad (22)$$

$$f_s^{n+1} = f_s^n + \Delta f_s, \quad (23)$$

式中 Δx 和 Δy 分别是固液界面元胞 x 方向和 y 方向的步长, n 和 $n + 1$ 分别是第 n 个和第 $n + 1$ 个模拟

时间步. 由(23)式可知,随着时间的推移,固相分数增加量 Δf_s 不断累积.

4. 模拟结果及讨论

4.1. 扩散和强制对流条件下单个三维等轴枝晶生长过程模拟结果

为了模拟纯扩散和强制对流条件下三维枝晶形貌演化过程,选取 $0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$ 的三维计算域,元胞步长为 $0.5 \text{ }\mu\text{m}$, 则计算域有 $200 \times 200 \times 200$ 个正交元胞组成. 由于 $\alpha_T \gg D_L$, 从而可假设枝晶处于等温过冷液相中,即计算域存在确定的过冷度 ΔT ; 强制对流条件下的入口流速 u_0 为 0.2 mm/s . 计算域中心放置一个固相溶质成分为 $k_0 \times C_0$ 的固相晶核($f_s = 1$), 其余位置是过冷度 ΔT 的液相元胞,采用溶质零通量边界条件,满足计算域溶质守恒,计算参数见表 1.

图 4 为不同过冷度下, $\text{NH}_4\text{Cl-74\% H}_2\text{O}$ 溶液在纯扩散条件下的三维形貌. 从图 4 可以看出: 当 $\Delta T = 4$

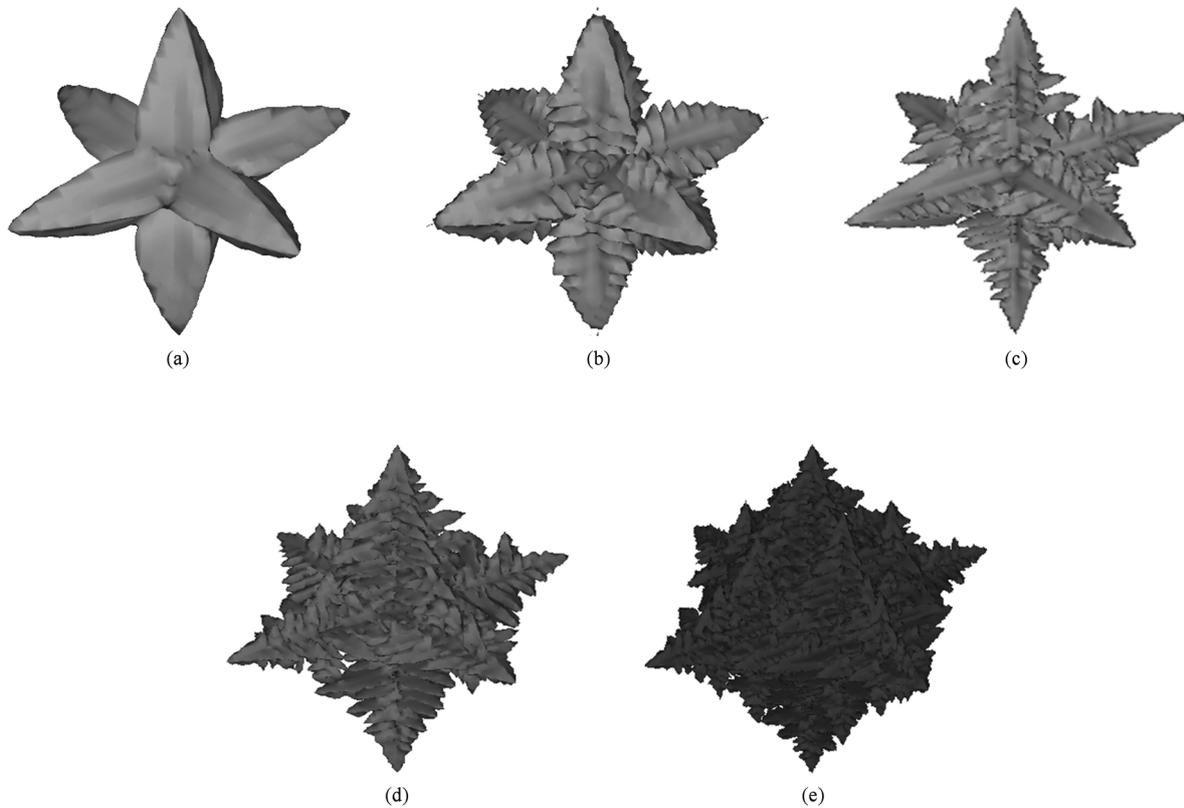


图 4 纯扩散条件下不同过冷度对三维单枝晶形貌的影响 $f_s = 5\%$. (a) $\Delta T = 4 \text{ K}$, (b) $\Delta T = 7 \text{ K}$, (c) $\Delta T = 10 \text{ K}$, (d) $\Delta T = 13 \text{ K}$, (e) $\Delta T = 16 \text{ K}$

K 时,枝晶二次臂不明显,枝晶尖端半径较大.随着过冷度的增大,生长速率不断增加,二次臂越来越发达,枝晶尖端半径不断减小,如图 4(b)—(e)所示.

为了定量分析 NH_4Cl -74% H_2O 溶液三维枝晶生长模型的可靠性,将模拟得到的枝晶尖端半径和尖端生长速率与纯扩散条件下的 LGK 模型^[14,15]进行对比.枝晶尖端假设成抛物形,Ivantsov 函数 $Iv(Pe)$ 可近似为^[22,23]

$$Iv(Pe) \approx -Pe \ln Pe - 0.5772Pe \quad (Pe \ll 1), \quad (24)$$

$$Iv(Pe) \approx 1 - 1/Pe + 2Pe^2 \quad (Pe \gg 1), \quad (25)$$

由于假设整个计算域处于等温过冷状态,相应

的 σ^* 为^[24,25]0.08469.联立 LGK 模型的(7)—(13)式,由于是低速率凝固条件, $Pe \ll 1$,使用二维 Newton-Raphson 迭代法^[26]进行迭代求解,获得稳态尖端半径和生长速率解析解.模拟的三维等轴枝晶尖端半径使用四阶多项式拟合^[2,25],生长速率使用界面追踪法,根据尖端生长固相增量和所需时间的关系获得尖端生长速率.

表 2 为不同过冷度下, NH_4Cl -74% H_2O 溶液枝晶尖端稳态生长速率和尖端半径模拟值与 LGK 模型理论值的对比.从表 2 可知,两者符合较好,随着过冷度增大,冷却速率增加,尖端半径减小.这说明本模型能很好描述三维枝晶生长过程.

表 2 枝晶尖端稳态生长速率 V 和尖端半径 R 的模拟值与 LGK 模型理论值的比较

$\Delta T/\text{K}$	$V(\text{模拟})/\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	$V(\text{LGK 模型})/\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	$R(\text{模拟})/\mu\text{m}$	$R(\text{LGK 模型})/\mu\text{m}$
4	6.43	7.30	1.87	2.13
7	19.77	21.87	1.16	1.21
10	43.01	43.90	0.75	0.86
13	67.23	73.10	0.68	0.66
16	94.64	108.80	0.56	0.54

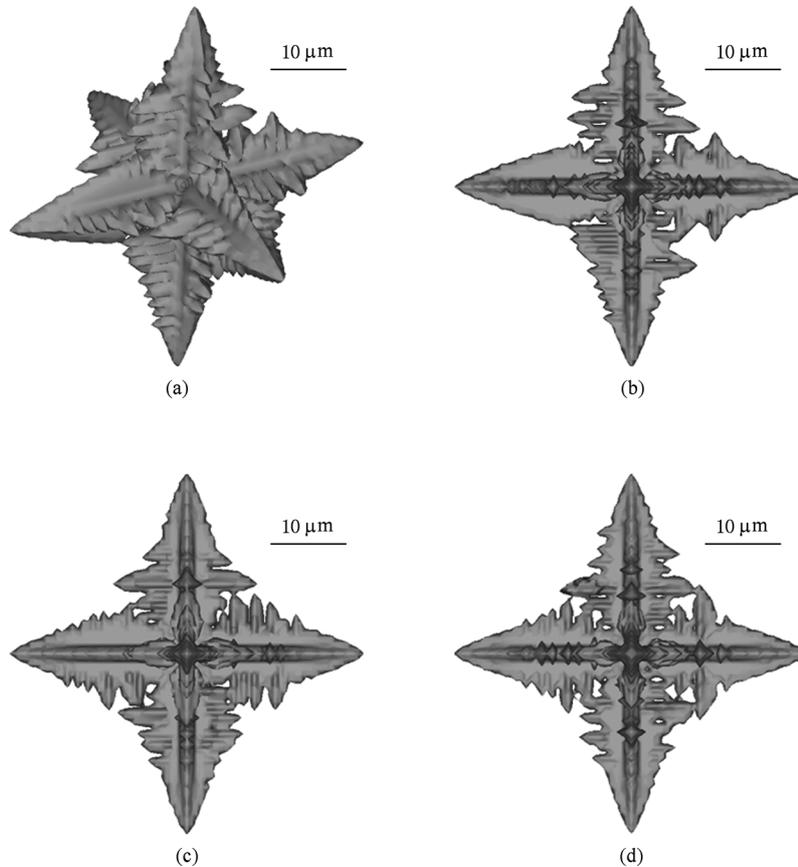


图 5 $\Delta T = 10 \text{ K}$ 时 NH_4Cl -74% H_2O 溶液纯扩散作用下三维单枝晶形貌 (a) 纯扩散作用三维枝晶, (b) x - z 平面投影, (c) x - y 平面投影, (d) y - z 平面投影

图 5 和图 6 所示分别为 $\Delta T = 10 \text{ K}$ 时纯扩散或强制对流作用下 $\text{NH}_4\text{Cl}-74\%\text{H}_2\text{O}$ 溶液单枝晶三维形貌以及各个不同平面的投影结果. 与 LGK 模型仅考虑纯扩散条件相比, MCA 模型可以考虑强制对流对枝晶尖端形貌的影响. 图 5(b) — (d) 的各个投影面显示出纯扩散作用下的三维枝晶呈现中心对称形貌. 这是因为此时枝晶生长主要受溶质扩散控制, 各一次臂尖端溶质扩散层厚度相当, 故而枝晶生长形貌对称.

如图 6 所示, 在强制对流作用下迎流侧尖端液中富集的溶质及时被带走, 溶质富集层厚度减小, 溶质浓度梯度增大, 而背流侧溶质富集层厚度增加, 从而迎流侧生长速度明显大于背流侧, 出现一次臂的非对称生长. 从图 6(b) 和 (c) 可以看出, 对流对树枝状晶体组织的影响还表现如下: 对流作用使得迎流侧一次臂受到冲刷, 有利于二次枝晶臂的发展; 背流侧的一次臂由于溶质大量富集, 其二次臂生长也受到抑制.

如图 7 所示, 迎流侧尖端稳态生长速率最大, 从而产生迎流生长现象. 图 7 中与流速方向垂直的 4 个绕流尖端稳态生长速率比纯扩散条件下的结果要大一些, 这是因为强制对流的存在使得绕流枝晶

臂尖端溶质富集层减薄, 浓度梯度增大, 从而使得生长速率较纯扩散条件下稍有增加.

根据图 6(a) 的模拟结果计算得到强制对流条件下三维枝晶迎流侧、背流侧、绕流侧尖端半径分别为 $0.50, 0.81, 0.67 \mu\text{m}$, 表明强制对流的作用使得枝晶出现了非对称生长现象. 迎流侧溶质富集层减薄, 生长速率较高, 从而导致迎流侧尖端半径减小, 背流侧由于溶质大量富集, 生长受到抑制, 尖端半径增大.

综上所述, MCA 模型可以模拟强制对流对枝晶界面前沿溶质扩散层的均匀性扰动, 从而使得枝晶生长过程中呈现出非对称生长特征, 一次枝晶臂和二次枝晶臂均在迎流侧优先生长, 而在背流侧受到抑制.

4.2. 自然对流作用下定向凝固生长模拟结果与实验验证

根据本文建立的 MCA 模型, 模拟了热溶质自然对流对定向凝固柱状晶生长过程一次臂间距的影响. 在图 2 所示的定向凝固实验装置中, 将装置与水平面的倾角 θ 设置为 10° , 热端高冷端低, 在试样盒二维平面上, 由于重力矢量分量的作用形成自然对流, 分量大小为 $g_y = g \sin \theta \approx 1.7 \text{ m/s}^2$. 计算域简化为

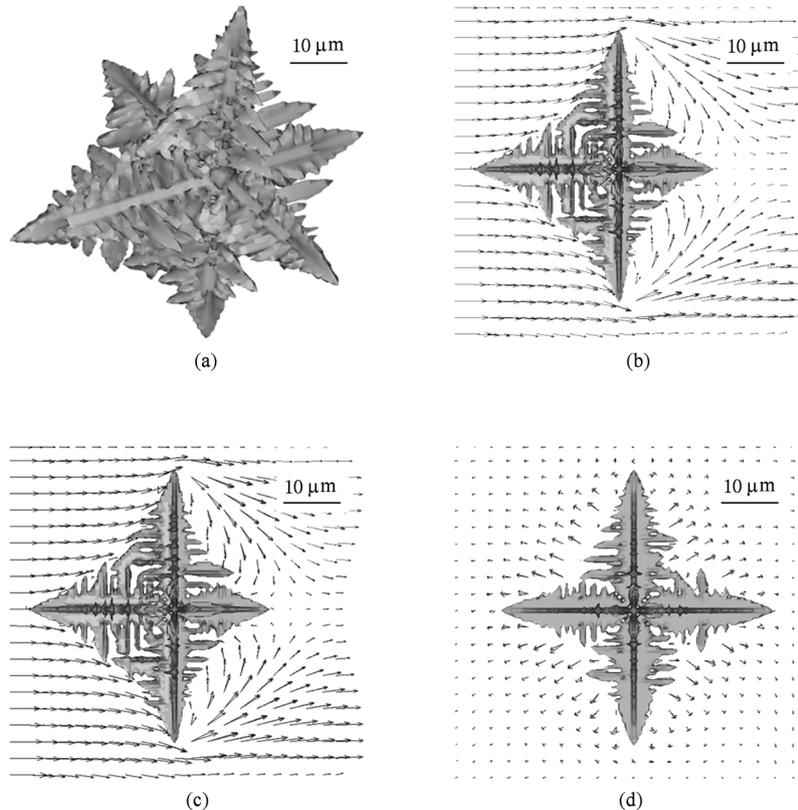


图 6 $\Delta T = 10 \text{ K}$ 时 $\text{NH}_4\text{Cl}-74\%\text{H}_2\text{O}$ 溶液强制对流作用下三维单枝晶形貌 (a) 有对流作用三维枝晶, (b) $x-z$ 平面投影, (c) $x-y$ 平面投影, (d) $y-z$ 平面投影

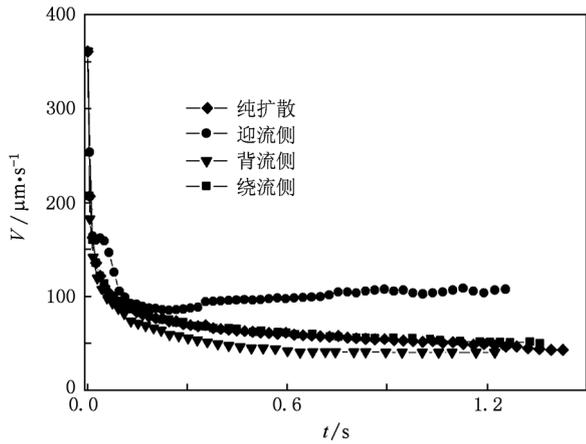


图7 三维等轴枝晶尖端生长速率 V 随时间 t 的变化关系 $\Delta T=10\text{ K}$

二维区域,为 $20\text{ mm} \times 40\text{ mm}$,划分正交元胞步长为 $10\text{ }\mu\text{m}$,元胞数为 2000×4000 .装置冷热端温度梯度为 1 K/mm ,抽拉速度为 $8\text{ }\mu\text{m/s}$,左右两侧为绝热边界,计算域与外界无溶质交换,计算中所使用的热物性参量取值见表 1.

在抽拉速度作用下,试样盒逐渐向冷端移动,当时间达到 390 s 时(以试样盒底部形核并开始生长作为时间零点),试样盒中 $\text{NH}_4\text{Cl-74\%H}_2\text{O}$ 溶液定向凝固温度场和溶质场分布的模拟结果如图 8 所示.由于热扩散效率远高于溶质扩散效率,试样盒中液相温度场主要受装置中温度梯度和抽拉速度的影响.从图 8(a)可以看出,液相温度场在自然对

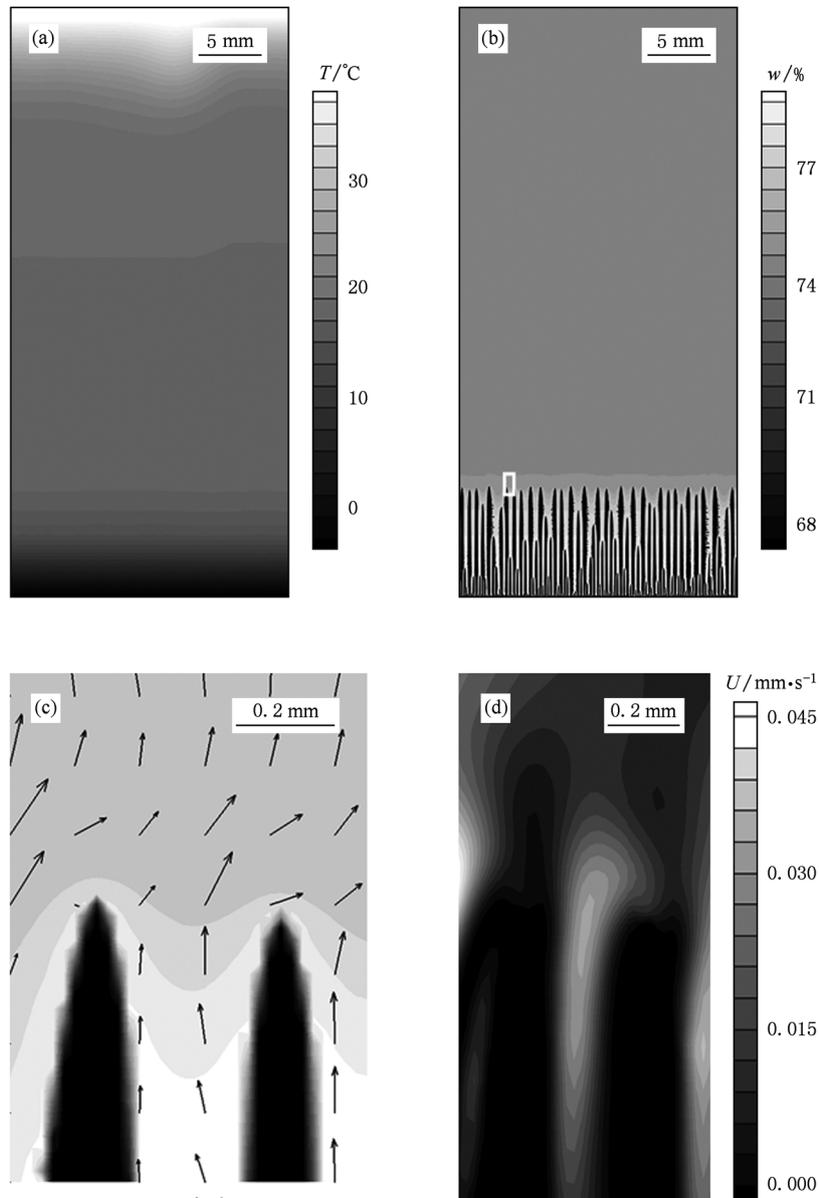


图8 试样盒中 $\text{NH}_4\text{Cl-74\%H}_2\text{O}$ 溶液定向凝固生长过程模拟结果 时间为 390 s . (a) 温度场分布, (b) 溶质场分布, (c) 局部速度矢量分布, (d) 局部速度大小分布

流作用下略有波动,但是仍能够在柱状晶界面前沿形成相对稳定的温度梯度,有利于最终形成柱状晶稳态生长过程(图 8(b)).从图 8(c)可以看出,在温度场、溶质场和热溶质浮升力共同作用下,柱状晶生长界面前沿略微有些起伏,但基本达到稳态.图 8(d)中,自然对流速度 $U = (u^2 + v^2)^{1/2}$,枝晶间由于溶质富集,并且温度较低,从而在热溶质浮升力作用下液相流动速度较大.

如图 2(b)所示, NH_4Cl -74% H_2O 溶液定向凝固过程中重力矢量分量在冷热端平面上的方向从热端指向冷端.图 8(c)模拟得到的速度场矢量从试样盒冷端指向热端,这是因为冷端枝晶主要成分为 NH_4Cl , H_2O 被排入枝晶间液相中,冷端位置

低、温度低、 H_2O 富集且密度比 NH_4Cl 小,因此在热溶质浮升力作用下,枝晶间液相中的 H_2O 沿一次枝晶臂边缘向试样盒的热端流动.此时自然对流使得枝晶间排出的 H_2O 被及时带走,枝晶间溶质富集量减小.

图 9 所示为实验观测得到不同时刻的 NH_4Cl -74% H_2O 溶液柱状晶形貌.受到热溶质浮升力自然对流的作用,枝晶间排出的溶质 H_2O 不断被及时带到柱状晶前沿液相中,随着抽拉过程的进行,枝晶间溶质富集现象不明显,因此二次臂甚至三次臂逐渐发达,出现了柱状晶一次臂的湮没与分枝现象.同时,自然对流使得柱状晶界面前沿温度场略有波动,从而造成柱状晶尖端位置略微有些起伏.

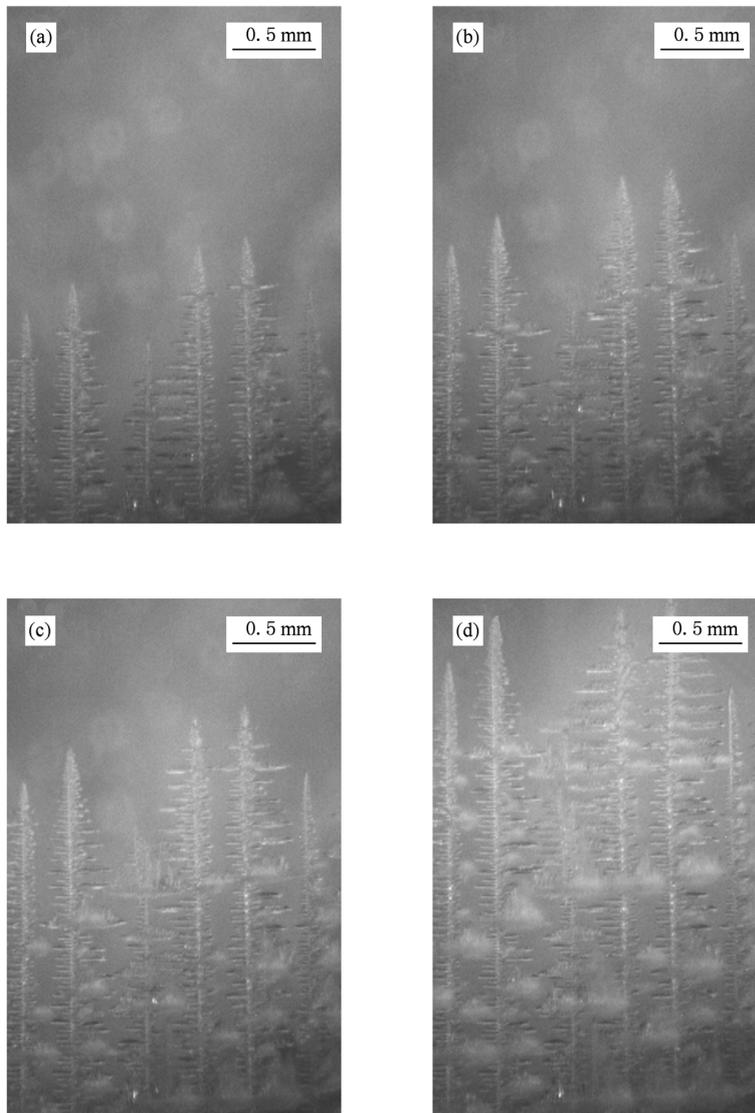


图 9 实验观测得到试样盒中 NH_4Cl -74% H_2O 溶液定向凝固柱状晶生长过程 (a) 320 s, (b) 356 s, (c) 386 s, (d) 472 s

图 10 所示为模拟得到柱状晶生长速率 V 随着时间 t 的变化. 随着抽拉过程的进行, 试样盒中柱状晶尖端生长速率在抽拉速度、温度梯度和热溶质浮升力的作用下基本达到稳态, 模拟的稳态生长速率和实验测量的稳态结果符合良好.

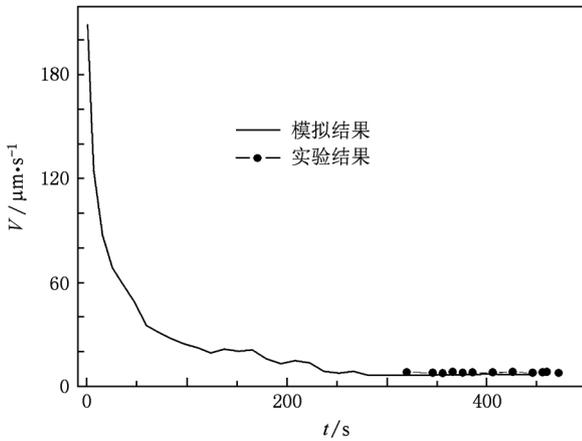


图 10 柱状晶尖端生长速率 V 的模拟结果和实验结果

当 $G = 1 \text{ K/mm}$, $V = 8 \text{ μm/s}$ 时得到的一次枝晶臂间距 λ_1 的最大值 $\lambda_{1\text{max}}$ 和最小值 $\lambda_{1\text{min}}$ 的模拟结果和实验结果如表 3 所列. MCA 模型考虑了热溶质浮升力的作用所导致的枝晶间溶质富集量减小, 模拟得到的 $\lambda_{1\text{max}}$ 和 $\lambda_{1\text{min}}$ 与实验结果符合较好. 这同时也验证了 MCA 模型的可靠性.

表 3 一次枝晶臂间距 λ_1 的模拟结果和实验结果对比 (单位为 μm)

$\lambda_{1\text{max}}$ (模拟)	$\lambda_{1\text{max}}$ (实验)	$\lambda_{1\text{min}}$ (模拟)	$\lambda_{1\text{min}}$ (实验)
470	487	380	392

5. 结 论

本文在 CA 模型中耦合了液相流动方程、传热和溶质传输方程, 建立了新的 MCA 模型, 实现了强制对流和热溶质自然对流两种对流对枝晶生长过程影响机理的数值模拟. 通过本模型模拟了等温过冷域中 $\text{NH}_4\text{Cl}-74\%\text{H}_2\text{O}$ 溶液三维单枝晶在纯扩散和强制对流条件下的枝晶形貌演化过程. 模拟结果表明: 枝晶在纯扩散条件下对称生长, 且与 LGK 模型的尖端半径和尖端生长速率理论值符合良好; 而在强制对流作用下 LGK 模型将不再适用, 通过本模型获得了三维枝晶的迎流生长现象, 迎流侧一次臂尖端溶质富集层减薄, 背流侧溶质富集层增加, 从而迎流侧生长较快, 背流侧受到抑制. 针对定向凝固过程, 本模型可以考虑成分过冷、曲率过冷、自然对流对溶质扩散的影响, 故可较为准确地模拟 $\text{NH}_4\text{Cl}-74\% \text{H}_2\text{O}$ 溶液二维定向凝固过程中的热溶质对流对柱状晶生长过程的影响. 模拟结果还表明, 由于重力矢量分量的作用所导致的试样盒中热溶质对流, 可以减小枝晶间的溶质富集. 一次臂间距模拟结果和实验结果基本一致, 表明本模型可以用于模拟热溶质自然对流作用对定向凝固过程柱状晶一次臂间距的影响.

[1] Trivedi R, Miyahara H, Mazumder P, Simsek E, Tewari S N 2001 *J. Cryst. Growth* **222** 365
 [2] Lu Y, Beckermann C, Ramirez J C 2005 *J. Cryst. Growth* **280** 320
 [3] Steinbach I 2009 *Acta Mater.* **57** 2640
 [4] Wang W, Lee P D, McLean M 2003 *Acta Mater.* **51** 2971
 [5] Shan B W, Huang W D, Lin X, Wei L 2008 *Acta Metall. Sin.* **44** 1042 (in Chinese) [单博炜、黄卫东、林鑫、魏雷 2008 金属学报 **44** 1042]
 [6] Shin Y H, Hong C P 2002 *ISIJ Int.* **42** 359
 [7] Guo D Y, Yang Y S 2006 *Foundry* **55** 601 (in Chinese) [郭大勇、杨院生 2006 铸造 **55** 601]
 [8] Li D M, Li R, Zhang P W 2007 *Appl. Math. Model.* **31** 971
 [9] Zhu M F, Dai T, Lee S Y, Hong C P 2008 *Comput. Math. Appl.* **55** 1620
 [10] 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]
 [11] Hansen G, Liu S, Lu S Z, Hellawell A 2002 *J. Cryst. Growth* **234** 731
 [12] Feng Y H, Nie H, Zhang X X 2008 *J. Eng. Thermophys.* **29** 301 (in Chinese) [冯妍会、聂红、张欣欣 2008 工程热物理学报 **29** 301]
 [13] Bennon W D, Incropera F P 1987 *Metall. Trans. B* **18** 611
 [14] Lipton J, Glicksman M E, Kurz W 1984 *Mater. Sci. Eng.* **65** 57
 [15] Lipton J, Glicksman M E, Kurz W 1987 *Metall. Mater. Trans. A* **18** 341
 [16] Liu Y, Xu Q Y, Liu B C 2006 *Tsinghua Sci. Tech.* **11** 495
 [17] Yu J, Xu Q Y, Cui K, Liu B C 2007 *Acta Metall. Sin.* **43** 731 (in Chinese) [于靖、许庆彦、崔锴、柳百成 2007 金属学报 **43** 731]

- [18] Li B, Xu Q Y, Pan D, Liu B C, Xiong Y C, Zhou Y J, Hong R Z 2008 *Acta Metall. Sin.* **44** 243 (in Chinese) [李斌、许庆彦、潘冬、柳百成、熊艳才、周永江、洪润洲 2008 金属学报 **44** 243]
- [19] Li B 2007 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [李斌 2007 博士学位论文 (北京: 清华大学)]
- [20] Nastac L 1999 *Acta Mater.* **47** 4253
- [21] Beltran-Sanchez L, Stefanescu D M 2004 *Metall. Mater. Trans. A* **35** 2471
- [22] Trivedi R, Kurz W 1994 *Int. Mater. Rev.* **39** 49
- [23] Stefanescu D M 2009 *Science and Engineering of Casting Solidification* (New York: Springer) p163
- [24] Barbieri A, Langer J S 1989 *Phys. Rev. A* **39** 5314
- [25] Pan S Y, Zhu M F 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S278 (in Chinese) [潘诗琰、朱鸣芳 2009 物理学报 **58** S278]
- [26] Beltran-Sanchez L 2003 *Ph. D. Dissertation* (Tuscaloosa: University of Alabama)

Simulation and experimental research of melt convection on dendrite morphology evolution *

Shi Yu-Feng Xu Qing-Yan[†] Liu Bai-Cheng

(Key Laboratory for Advanced Materials Processing Technology of Ministry of Education, Department of Mechanical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 16 December 2010; revised manuscript received 27 July 2011)

Abstract

The existence of forced and natural melt convections in the liquid in front of dendritic tip will Change the thickness of diffusion layer, which can significantly influence the dendrite morphology. Using the cellular automaton method and considering the influences of melt convection and heat transfer on microstructure evolution, a new numerical model is established by coupling the Navier-Stokes equations, the heat transfer equation and the solute convection and diffusion equation. The influences of forced and natural melt convection on dendrite morphology evolution are investigated by this model. The three-dimensional simulations reproduce the equiaxed dendrite growth, and reveal the influence of convection on dendritic growth rate and tip radius. The effect of natural convection on columnar dendrite growth during directional solidification of $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ solution is simulated via the model. Experimental validation of this solidification process is performed and compared with simulation results. The simulation results accord well with experimental measurements. Hence, the model is reliable and can be extended to the prediction of the behavior of dendrite growth in real alloys.

Keywords: cellular automaton, convection, $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ solution, directional solidification

PACS: 61.30.-v, 81.10.Aj

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2005CB724105, 2011CB706801), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10477010, 51171089), and the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2007AA04Z141).

[†] Corresponding author. E-mail: scjxqy@tsinghua.edu.cn