

粗化过程中颗粒界面形状演化的 三维多相场法研究*

罗海滨 李俊杰 马渊 郭春文 王锦程†

(西北工业大学, 凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2013年7月24日收到; 2013年9月23日收到修改稿)

利用多相场模型对液-固两相体系中固相颗粒的粗化过程进行了三维模拟, 对粗化过程中的界面形状分布进行了统计分析, 研究了不同固相体积分数下颗粒连接状态对界面形状演化及粗化速率的影响. 模拟结果表明: 当颗粒间存在大量连接时, 粗化速率随固相分数的变化速率比颗粒无连接时变缓, 且随着粗化进行, 高曲率的双曲面界面所占比例不断降低, 低曲率的椭球形界面所占比例逐渐增多; 无论固相颗粒间是否发生连接, 界面形状演化经历一定阶段后, 三维界面形状分布均呈现自相似性, 但随着固相体积分数的增加, 界面形状分布呈现自相似性所需的时间延长.

关键词: 粗化, 相场法, 三维模拟, 界面曲率

PACS: 64.70.dm, 81.30.-t, 82.20.wt

DOI: 10.7498/aps.63.026401

1 引言

粗化是两相体系中发生的一种典型微观组织演化方式, 其驱动力是界面面积减少而带来的体系能量降低. 粗化领域最经典的理论是由 Lifshitz 和 Slyozov^[1] 及 Wagner^[2] 提出的 LSW 理论. LSW 理论假设第二相颗粒保持球形, 其所占体积分数趋于无穷小, 且颗粒粗化只通过扩散作用实现. 在这种假设情况下, 粗化达到稳态后, 平均颗粒半径 R 的三次方与时间满足线性关系, 并且颗粒相对尺寸分布具有自相似性. 对于枝晶组织, 通常采用二次枝晶臂间距 λ_2 来表征其粗化过程, 且实验观测结果表明 $\lambda_2 \propto t^{1/3}$ ^[3]. 但是随着粗化的进行, 枝晶组织逐渐演化成球形颗粒, 此时二次枝晶臂无法测量, 因此 λ_2 并不能很好地表征粗化过程. 由于比表面积 S_v 的测量不受微观组织形貌的影响, 对于任意形貌的组织都可以直接准确测量得到, 一些学

者^[4-6] 提出用比表面积 S_v 来表征复杂组织的粗化过程, Marsh 和 Glicksman^[4] 指出比表面积 S_v 的三次方与粗化时间 t 同样满足线性关系.

以往对于粗化过程的研究大多基于二维截面的观测及上述平均参量 (R , λ_2 , S_v) 的分析, 缺少对于复杂三维组织界面形貌细节的考虑, 因而限制了人们对复杂三维组织粗化规律的深入理解. 而三维组织界面形貌的具体细节, 即不同位置处的界面主曲率, 直接决定了界面溶质浓度, 而由界面曲率差异引起的溶质溶度差则是推动粗化进行的直接原因. 基于上述考虑, 近年来 Voorhees 等^[7,8] 提出通过界面形状分布 (ISD) 来表征复杂三维组织的粗化过程, 即将粗化过程中某一时刻下微观组织的界面划分成多个微小单元, 每一单元界面用两个主曲率 κ_1 和 κ_2 来反映出其形状, 进而统计出不同时刻的界面单元主曲率分布概率, 通过主曲率分布概率随时间的演化就可以清晰定量地反映

* 国家自然科学基金 (批准号: 51071128, 51101124)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CB610401) 和教育部博士点基金 (批准号: 20116102120018) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

界面形状的演化. 这种分析方法可以完整地反映复杂微观组织的形貌演化, 无需对组织形貌进行任何假设. 图 1 为 Voorhees 等 [7] 给出的界面形状分布图中的典型界面形貌. 图中不同区域对应不同形貌的界面, 如所有椭圆形界面在 1, 4 区域, 所有双曲界面在 2, 3 区域. 目前国际上已经开展了一些从界面形状分布出发研究粗化现象的工作, Mendoza 等 [9], Kammer 等 [10] 分别研究了 Al-Cu 合金和 Pb-Sn 合金定向凝固树枝晶在共晶温度以上的粗化现象, 他们发现 $S_v^{-1} \propto t^{1/3}$, 但是 ISD 不具有自相似性. Fife 和 Voorhees [11] 对 Al-Cu 等轴树枝晶粗化做了类似的研究, 发现虽然 $S_v^{-1} \propto t^{1/3}$, 但经过足够长时间的粗化 ISD 呈现自相似性. Karen 等 [12] 通过对多孔纳米金 ISD 的研究, 指出其 ISD 在粗化过程中不具有自相似性. 这些研究虽然取得了一些初步成果, 但是仍存在许多不足和待解决的问题, 如对于粗化过程中 ISD 演化是否具有自相似还存在争议.

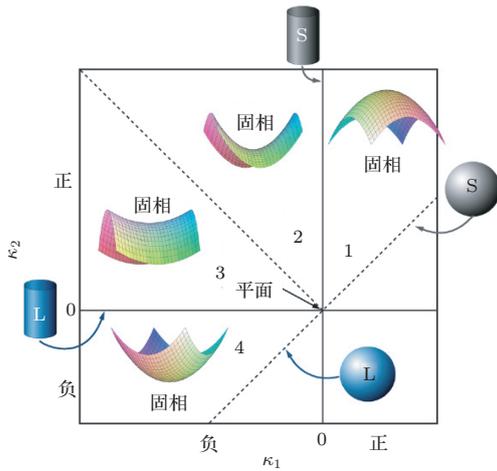


图 1 界面形状分布图中的典型界面形貌 [7]

相场法模拟技术在材料微观组织演化的多个领域得到了广泛应用 [13-16]. 在凝固组织粗化方面, 文献 [17-19] 通过相场法研究了二维条件下的颗粒粗化情况, Kim [20] 用相场法模拟了三维条件下的液-固两相系统中球形颗粒的粗化过程. 王陶等 [21] 利用相场法模拟了二维条件下固相体积分数及颗粒间界面润湿性对粗化的影响. 以往的模拟研究大部分没有考虑合并连接现象对粗化的影响, 也没有涉及用界面形状分布对粗化进行表征. 本文利用多相场模型, 通过调整固相分数及固-固界面能与固-液界面能的比值, 对不同条件下液-固两相

系统中的颗粒组织粗化过程进行三维模拟, 并通过平均颗粒半径及界面形状分布的统计分析, 来研究固相分数及颗粒连接对粗化动力学的影响.

2 相场模型及参数统计

本文采用 Kim [20] 提出的多相场模型, 模型假设颗粒间的溶质传输只通过扩散交互作用. 引进多相场 $\phi_i (i = 1, 2, 3, \dots, n)$, ϕ_1 为液相, $\phi_i (i \neq 1)$ 为固相, 当 $i = 2, 3, 4, \dots, n$ 时 ϕ_i 代表不同取向的晶粒. 相场在每一点处共存且满足:

$$\sum_{i=1}^n \phi_i = 1, \quad (1)$$

相场演化方程可表示为

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{n} \sum_{j \neq i} s_i s_j M_{ij} \left[\frac{\delta F}{\delta \phi_i} - \frac{\delta F}{\delta \phi_j} + f^i(c_i) - f^j(c_j) - (c_i - c_j) \bar{\mu} \right], \quad (2)$$

其中, n 为任意节点上非零相场变量的个数; s_i 为阶梯函数, 当 $\phi_i > 0$ 时 $s_i = 1$, 否则 $s_i = 0$, M_{ij} 为相场动力学系数, $\delta F / \delta \phi_i$ 的表达式为

$$\frac{\delta F}{\delta \phi_i} = \sum_{k \neq i} \left(\frac{\varepsilon_{ik}^2}{2} \nabla^2 \phi_k + \bar{\omega}_{ik} \phi_k \right), \quad (3)$$

ε_{ik} 为梯度项系数, $\bar{\omega}_{ik}$ 为双阱势高度.

$$f^i(c_i) - f^j(c_j) - (c_i - c_j) \bar{\mu} = \begin{cases} 0 & i \neq n, j \neq n \\ (\sigma_{ij}/d_0)(c_L - c_L^e) & i \neq n, j = n \\ -(\sigma_{ij}/d_0)(c_L - c_L^e) & i = n, j \neq n \end{cases} \quad (4)$$

c_i 和 $f^i(c_i)$ 为特定节点处的成分和溶质场密度, 当 $i = 1$ 时, 有 $c_i = c_L$ 和 $f^i(c_i) = f^L(c_L)$, 当 $i \neq 1$ 时, 则 $c_i = c_S$ 和 $f^i(c_i) = f^S(c_S)$; $\bar{\mu}$ 为化学势; σ_{ij} 为界面能; d_0 为毛细长度; c_L 为液相浓度; c_L^e 为液相平衡浓度. 模型中参数有如下关系:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{ij} &= \frac{4}{\pi} \sqrt{\xi_{ij} \sigma_{ij}}, \\ w_{ij} &= \frac{2\sigma_{ij}}{\xi_{ij}}, \\ M_{ij} &= \frac{d_0 D}{(1-k)c_L^e} \frac{\sqrt{2w_{ij}}}{K \varepsilon_{ij}^3}, \end{aligned} \quad (5)$$

D 为扩散系数, k 为分配系数, ξ_{ij} 为界面厚度. 通过调整固-液界面能和固-固界面能的比值改变颗粒间的连接状况.

在忽略固相扩散且加入反溶质截留项以消除非真实界面效应的情况下, 最终浓度场控制方程为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \phi_1 D_L \nabla c_L + \nabla \left[\frac{\varepsilon}{\sqrt{2W}} (c_L - c_S) \times \sqrt{\phi_1(1-\phi_1)} \frac{\partial \phi_1}{\partial t} \frac{\nabla \phi_1}{|\nabla \phi_1|} \right]. \quad (6)$$

利用均匀网格有限差分法对相场和溶质场方程进行离散. 模拟中使用的无量纲参数如下: 液相平衡浓度为 $c_L^e = 0.1$, 毛细长度 $d_0 = 0.03$, 扩散系数 $D = 1$, 溶质分配系数 $k = 0.5$, 空间步长 $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 1$, 时间步长 $dt = 0.1$, 界面厚度 $\xi = 6\Delta x$. 颗粒的连接状况通过改变固-固界面能 σ_{SS} 与固-液界面能 σ_{SL} 的比值来控制, 当 $\sigma_{SS}/\sigma_{SL} > 2$ 时, 固-固界面被液相完全润湿, 固相颗粒间没有接触; 当 $\sigma_{SS}/\sigma_{SL} < 2$ 时, 固相颗粒间出现合并连接. 本文分别选取 $\sigma_{SS}/\sigma_{SL} = 2.5$ 和 $\sigma_{SS}/\sigma_{SL} = 1.7$ 来控制固相颗粒间的合并连接.

界面的平均曲率 H 可以用下式来计算:

$$H = \frac{1}{2}(\nabla \cdot \hat{n}), \quad (7)$$

其中, \hat{n} 为序参量法线方向的梯度,

$$\hat{n} = \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} = \frac{\phi_x \mathbf{i} + \phi_y \mathbf{j} + \phi_z \mathbf{k}}{\sqrt{\phi_x^2 + \phi_y^2 + \phi_z^2}}, \quad (8)$$

最终得到由序参量 ϕ 表示的平均曲率为

$$H = \frac{1}{2}(\nabla \cdot \hat{n}) = \left[\phi_{xx}(\phi_y^2 + \phi_z^2) + \phi_{yy}(\phi_x^2 + \phi_z^2) + \phi_{zz}(\phi_x^2 + \phi_y^2) - 2(\phi_x \phi_y \phi_{xy} + \phi_y \phi_z \phi_{yz} + \phi_x \phi_z \phi_{xz}) \right] \left[2(\phi_x^2 + \phi_y^2 + \phi_z^2)^{3/2} \right]^{-1}. \quad (9)$$

由序参量表示的高斯曲率为

$$K = \frac{\nabla \phi \times \mathbf{H}^*(\phi) \times \nabla \phi^T}{|\nabla \phi|^4} = \left[\phi_x^2(\phi_{yy}\phi_{zz} - \phi_{yz}^2) + \phi_y^2(\phi_{xx}\phi_{zz} - \phi_{xz}^2) + \phi_z^2(\phi_{xx}\phi_{yy} - \phi_{xy}^2) \right] \left[(\phi_x^2 + \phi_y^2 + \phi_z^2)^2 \right]^{-1} + \left\{ 2[\phi_x \phi_y(\phi_{xz}\phi_{yz} - \phi_{xy}\phi_{zz}) + \phi_y \phi_z(\phi_{xy}\phi_{xz} - \phi_{yz}\phi_{xx}) + \phi_x \phi_z(\phi_{xy}\phi_{yz} - \phi_{xz}\phi_{yy})] \right\} \times \left[(\phi_x^2 + \phi_y^2 + \phi_z^2)^2 \right]^{-1}, \quad (10)$$

其中 $\mathbf{H}^*(\phi)$ 是 $\mathbf{H}(\phi)$ 的伴随矩阵

$$\mathbf{H}(\phi) = \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} & \frac{\partial^2 \phi}{\partial xy} & \frac{\partial^2 \phi}{\partial xz} \\ \frac{\partial^2 \phi}{\partial yx} & \frac{\partial^2 \phi}{\partial yy} & \frac{\partial^2 \phi}{\partial yz} \\ \frac{\partial^2 \phi}{\partial zx} & \frac{\partial^2 \phi}{\partial zy} & \frac{\partial^2 \phi}{\partial zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \phi_{xx} & \phi_{xy} & \phi_{xz} \\ \phi_{yx} & \phi_{yy} & \phi_{yz} \\ \phi_{zx} & \phi_{zy} & \phi_{zz} \end{pmatrix}, \quad (11)$$

$\mathbf{H}^*(\phi) =$

$$\begin{pmatrix} \phi_{yy}\phi_{zz} - \phi_{yz}\phi_{zy} & \phi_{yz}\phi_{zx} - \phi_{yx}\phi_{zz} & \phi_{yx}\phi_{zy} - \phi_{yy}\phi_{zx} \\ \phi_{xz}\phi_{zy} - \phi_{xy}\phi_{zz} & \phi_{xx}\phi_{zz} - \phi_{xz}\phi_{zx} & \phi_{xy}\phi_{zx} - \phi_{xx}\phi_{zy} \\ \phi_{xy}\phi_{yz} - \phi_{xz}\phi_{yy} & \phi_{yx}\phi_{xz} - \phi_{xx}\phi_{yz} & \phi_{xx}\phi_{yy} - \phi_{xy}\phi_{yx} \end{pmatrix}. \quad (12)$$

由平均曲率 H 和高斯曲率 K 可得到两个主曲率 κ_1 和 κ_2

$$\kappa_1 = H - \sqrt{H^2 - K}, \quad (13)$$

$$\kappa_2 = H + \sqrt{H^2 - K}. \quad (14)$$

经典粗化理论中假定粗化过程中固相体积分数保持不变. 对于大多数实际材料体系, 由于毛细长度与晶粒尺寸的比值很小, 由 Gibbs-Thomson 效应引起的平衡溶质浓度变化很小, 因而可以很好地满足上述假设. 但在相场模拟中, 为了加快粗化速率, 缩短计算时间, 需要采用较大的毛细长度 d_0 , 这就增加了界面曲率对体系平衡溶质成分的影响, 因而随粗化的进行, 固相体积分数将产生较大变化. 为了消除固相体积分数改变对粗化速率常数统计的影响, 本文采用 Kim^[20] 给出的方法对粗化速率常数 K 的统计进行如下修正:

$$K = K^{\text{app}} - \Delta K, \quad (15)$$

其中 K 为修正后不受体积分数变化影响的粗化速率常数, K^{app} 为从模拟结果中直接测量得到的粗化速率常数, ΔK 为体积分数改变引起的粗化速率常数改变量,

$$\Delta K = \frac{r_p^3}{f_p} \frac{df_p}{dt}. \quad (16)$$

3 模拟结果与讨论

本文选取 $300 \times 300 \times 300$ 的计算区域, 模拟固相颗粒间不存在连接和存在连接两种情况下固相

分数从0.1到0.5 (对应初始颗粒个数分别为5156和26096) 的组织粗化过程.

3.1 颗粒形貌演化

图2是固相颗粒无连接情况下, 局部颗粒形貌演化图. 从图中可以看出, 在任何一种固相分数下, 随着粗化时间的增长, 体系内颗粒数目减少, 平均颗粒尺寸增大. 进一步仔细观察还可以发现, 在低固相分数下 ($f_p = 0.1$), 固相颗粒近似保持球形; 固相分数为0.5时, 由于颗粒间的相互影响, 颗粒发生了明显变形, 部分颗粒边界发生平直化. 这种变化从截面图中更容易发现, 图3为颗粒间无连接情况下, $f_p = 0.1$ 和 $f_p = 0.5$ 时的二维截面图, 从图3(b)中可以明显看出存在平直化的晶界和高曲率的尖角. 此外, 在颗粒间无连接时高固相体积分数下还存在很多充满液相的三向连通结构, 如图3(b)中黑色线框所示. 在Kailasam等^[22]的实验中观测到了同样的现象.

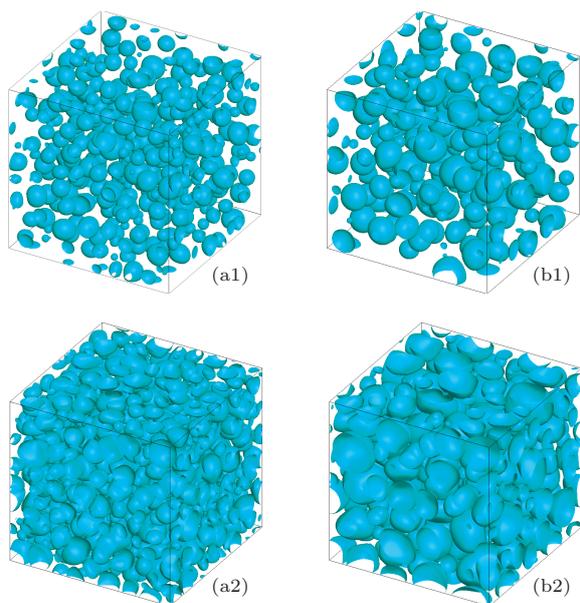


图2 固相颗粒间没有连接情况下, 颗粒组织形貌演化图 (a1), (b1) 初始固相分数 $f_p = 0.1$; (a2), (b2) 初始固相分数 $f_p = 0.5$; (a1), (a2) $t = 3000dt$, 颗粒平均半径分别为 $r_p = 6.9\Delta x$, $r_p = 8.9\Delta x$; (b1), (b2) $t = 10000dt$, 颗粒平均半径分别为 $r_p = 10.5\Delta x$, $r_p = 14.6\Delta x$

图4为固相颗粒之间有连接情况下, 局部颗粒形貌演化图. 从图中可以看出, 与前面颗粒间无连接的情况类似, 随着粗化时间的增长, 体系内颗粒数目减少, 平均颗粒尺寸增大. 在低固相分数下 ($f_p = 0.1$), 颗粒大都以球形均匀分布于空间中, 不

过也出现了少量的连接; 固相分数为0.5时, 由于固相分数增高, 颗粒之间的连接增多, 几乎所有的颗粒都连在了一起. 图5为 $f_p = 0.1$ 和 $f_p = 0.5$ 时的二维截面图, 从图中可以更清楚地看到这一点.

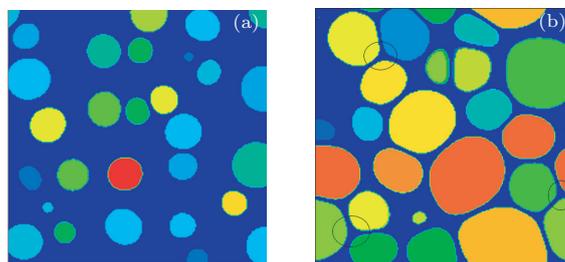


图3 无合并连接时二维截面图 (a) 初始固相分数 $f_p = 0.1$, $t = 10000dt$; (b) 初始固相分数 $f_p = 0.5$, $t = 10000dt$

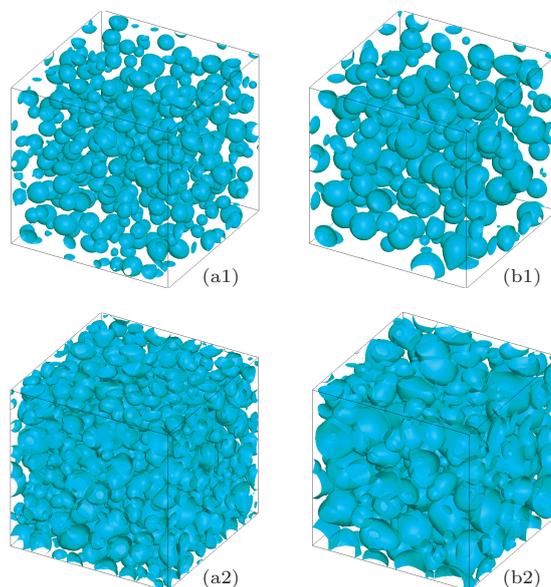


图4 固相颗粒有连接情况下, 颗粒组织形貌演化图 (a1), (b1) 初始固相分数 $f_p = 0.1$; (a2), (b2) 初始固相分数 $f_p = 0.5$; (a1), (a2) $t = 3000dt$, 颗粒平均半径分别为 $r_p = 6.8\Delta x$, $r_p = 8.7\Delta x$; (b1), (b2) $t = 10000dt$, 颗粒平均半径分别为 $r_p = 10.4\Delta x$, $r_p = 14.1\Delta x$

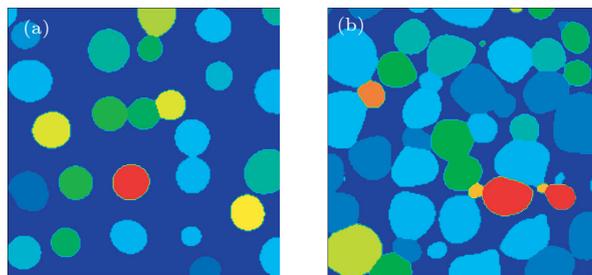


图5 (a) 初始固相分数为 $f_p = 0.1$, 颗粒基本为球形, 出现少量的连接; (b) 初始体积分数为 $f_p = 0.5$, 几乎所有颗粒连在一起; $t = 10000dt$

3.2 粗化速率常数

在计算初期的组织调整阶段,体系的固相分数会急剧升高,随后固相体积分数的变化趋于平缓.这里采用前面提到的修正方法,来消除固相体积分数变化对粗化速率常数统计的影响.图6为修正后的粗化速率常数 K 随固相分数 f_p 的变化.从中可以看出,固相间无连接时粗化速率常数 K 随着固相分数的增加而增大,与 Marsh-Glicksman (MG) 模型^[4] 符合较好;固相间有连接时粗化速率常数也随着固相分数的增加而增大,但是当固相分数较大时, K 值的增加变缓.这一结果与我们之前的二维相场模拟结果^[21] 相符合,即当颗粒间出现连接后,受到三相点平衡关系的制约,颗粒颈部连接处不同颗粒间的界面曲率差值减小,导致其间液相浓度梯度减小,扩散速度降低,使粗化速率降低,随固相分数的增加,形成连接的比例升高,其对 K 值增加的

阻碍作用不断加强.

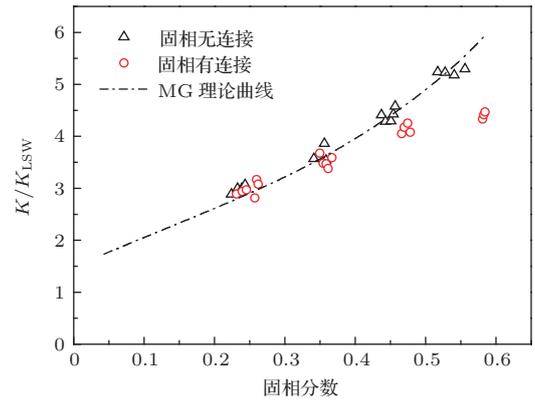


图6 粗化速率常数随固相分数的变化

3.3 界面形状分布 (ISD)

当迭代到3000步时固相体积分数趋于稳定,因此这里只对3000步以后的界面形状分布进行统

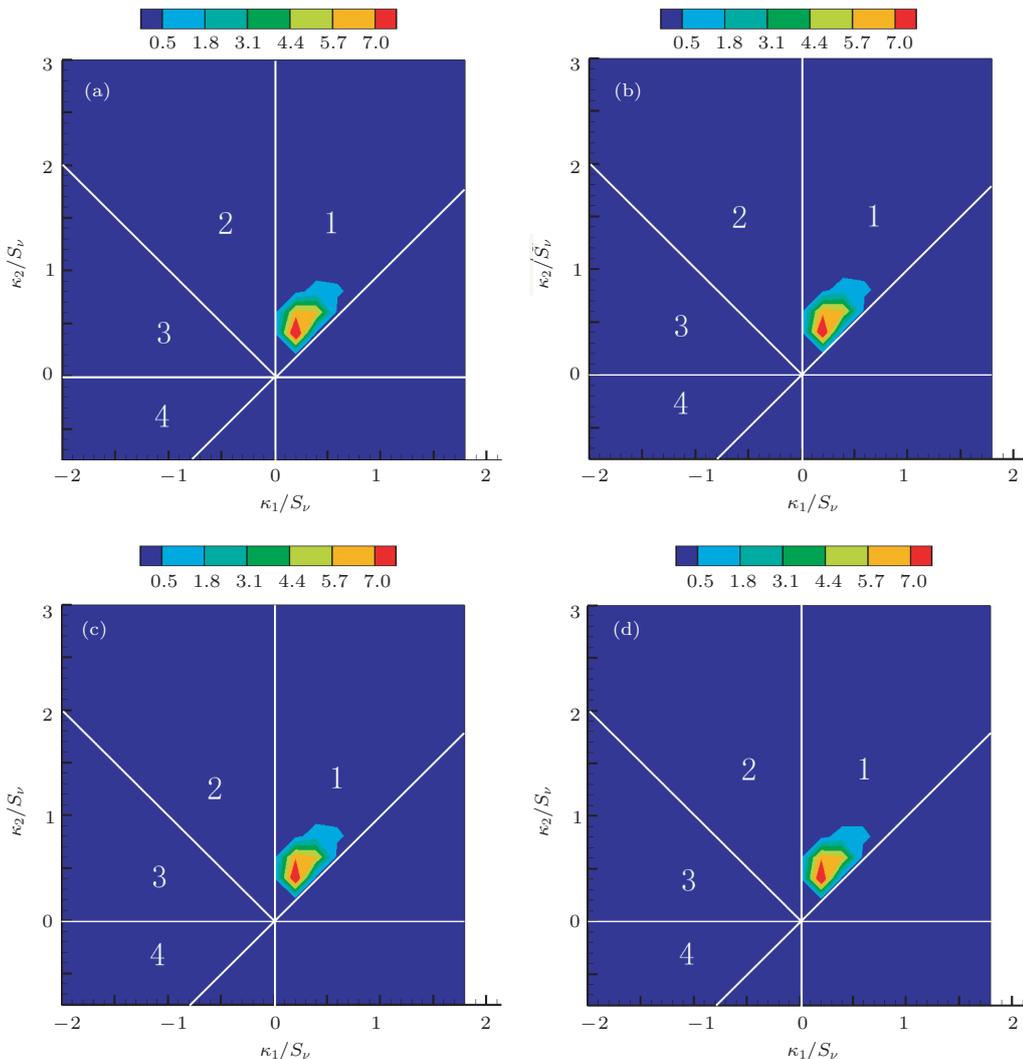


图7 固相颗粒间无连接时初始固相分数 $f_p = 0.1$ 时不同时刻颗粒 ISD (a) $t = 3000 dt$; (b) $t = 5000 dt$; (c) $t = 7000 dt$; (d) $t = 9000 dt$

计. 随着时间演化, 初始固相分数 $f_p = 0.1$ 时颗粒数目从最初的 1266 个下降到 $t = 9000dt$ 时的 654 个, 当初始固相分数 $f_p = 0.5$ 时, 颗粒数目从最初的 2594 个下降到 $t = 9000dt$ 时的 1110 个. 图 7 为固相颗粒间无连接、初始固相分数 $f_p = 0.1$ 时, 不同时刻颗粒界面形状分布图, 图中颜色条代表界面曲率的概率密度, 所有曲率都用比表面积 S_v 来进行归一化, 图中不同区域对应的界面形貌如图 1 所示. 由图 7 可以看出低固相分数下粗化很快进入稳态, ISD 基本不随时间变化, 这说明低固相分数下固相间无连接时 ISD 具有自相似性. 因为低固相分数固相无连接情况下颗粒基本保持球形, 所以图 7(a)—(d) 四幅图中界面形状完全分布在区域 1 中.

图 8 为初始固相分数 $f_p = 0.5$ 、固相颗粒间无连接时, 不同时刻颗粒界面形状分布图. 由于固相体积分数较高, 在赋初始组织时不可避免的存在颗粒间的连接, 因而在 2, 3 区域内主曲率概率密度出现非零值, 随着演化的进行, 由于设定的固-液界面能之比使得固-固界面会被液相完全润湿, 因而颗粒间的连接将逐渐断开, 可以从图 8 中清晰地看到. 在 $t = 7000dt$ 时, 3 区域的曲率密度值已经为 0, 原点处的曲率概率密度逐渐增大, 这是由颗粒间的连接不断减少, 并且部分颗粒界面发生平直化造成的. 图 9 为 $t = 9000dt$ 时, 从组织中提取出的几个颗粒, 不同颜色表示不同的平均曲率值. 从图中可以看出颗粒界面的平直化, 以及颗粒间的少量连接产生的负平均曲率.

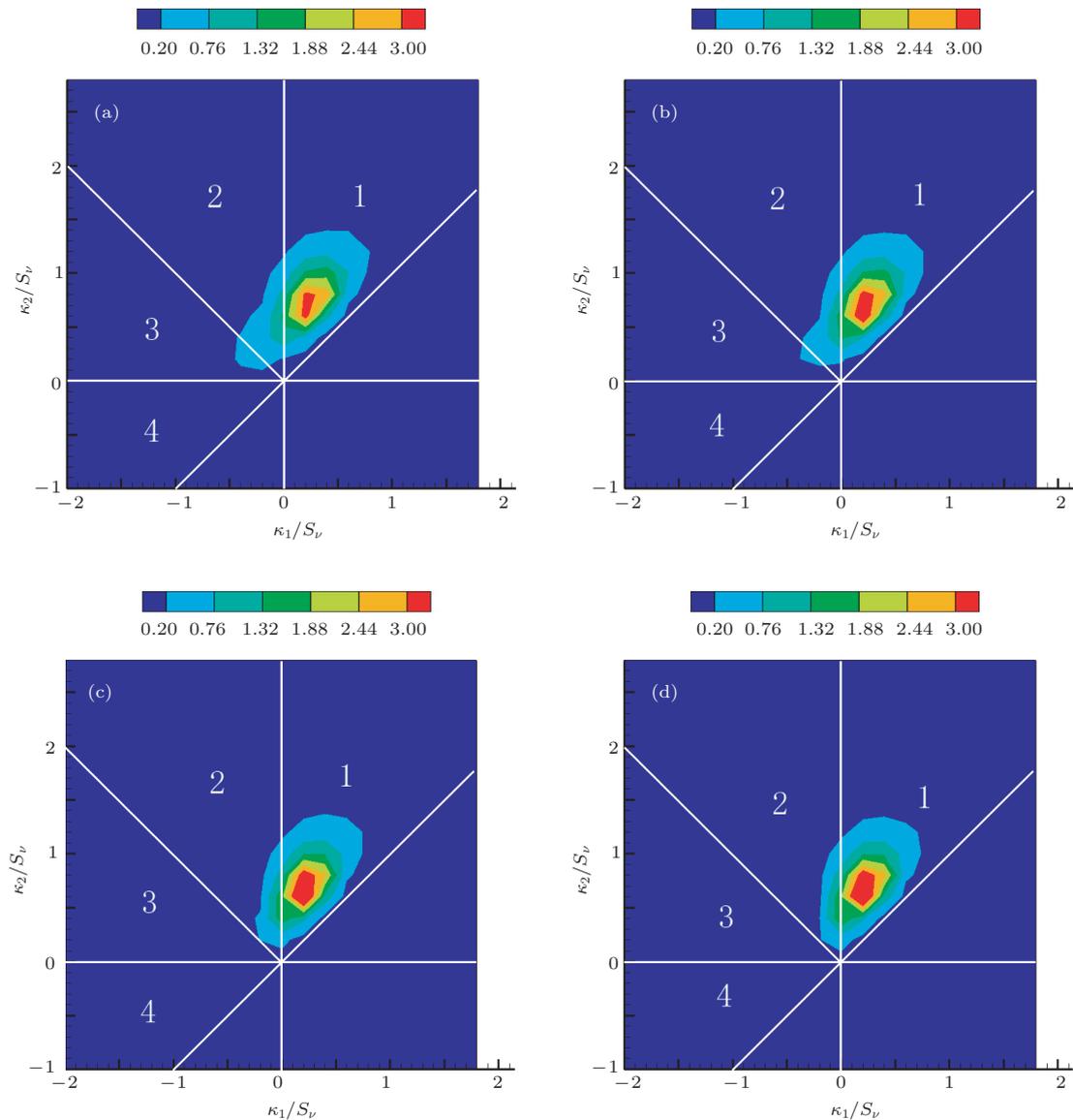


图 8 固相颗粒间无连接时初始固相分数 $f_p = 0.5$ 时不同时刻颗粒 ISD (a) $t = 3000dt$; (b) $t = 5000dt$; (c) $t = 7000dt$; (d) $t = 9000dt$

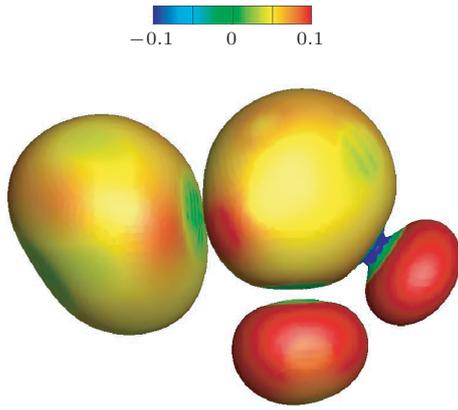


图9 局部颗粒形貌及颗粒平均曲率, 初始固相分数 $f_p = 0.5$ 颗粒间无连接, $t = 9000dt$

图10为固相颗粒间有连接, 初始固相分数 $f_p = 0.1$ 时, 不同时刻颗粒界面形状分布图. 从图中可以看出界面形貌主要分布在1区域, 只有少量分布在2区域, 这是因为低固相分数下, 颗

粒基本保持球形, 只有少量的连接存在. 对比图10(a)—(d)不难发现, ISD基本不随时间变化, 这说明低固相分数下颗粒间有连接存在时ISD具有自相似性.

高固相分数下颗粒间有连接的情况, 颗粒界面形貌复杂, 颗粒间的连接使界面形状分布广泛, 这可以从图11中看出, $t = 3000dt$ 时界面形状广泛分布于1, 2, 3三个区域. 对比图11中不同时刻的界面形状分布图可以发现, 随粗化的进行, 区域3的界面形状分布所占比例越来越少, 而区域1的中心区域界面形状分布所占比例越来越多, 这说明在高曲率的双曲形界面所占比例减少的同时, 低曲率的椭球形界面所占比例在逐渐增多. 高曲率双曲形界面所占比例减少是由与大颗粒连接的小颗粒随粗化的进行逐渐消失导致的; 低曲率的椭球形界面

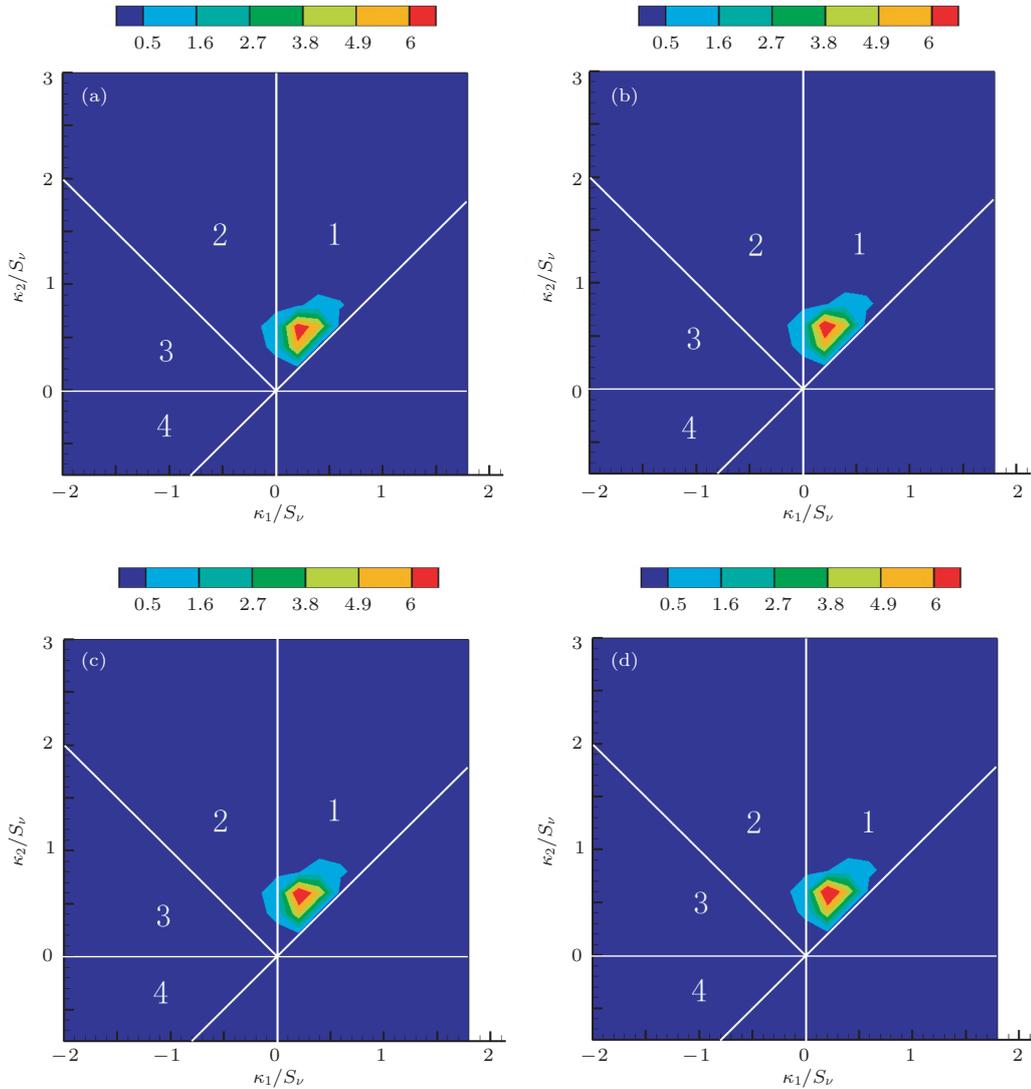


图10 固相颗粒间有连接时初始固相分数 $f_p = 0.1$ 时不同时刻颗粒ISD (a) $t = 3000dt$; (b) $t = 5000dt$; (c) $t = 7000dt$; (d) $t = 9000dt$

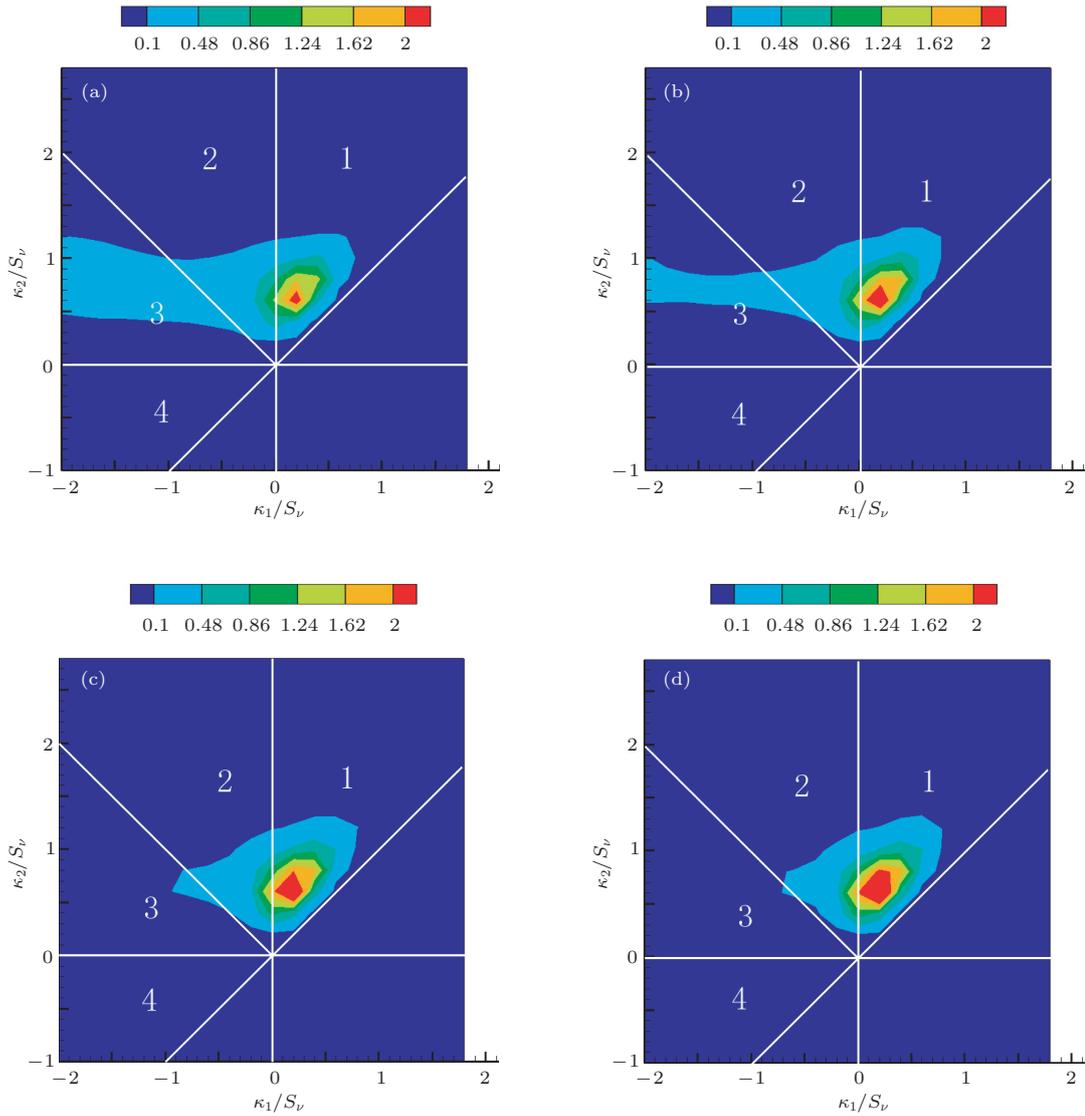


图 11 固相颗粒间有连接时初始固相分数 $f_p = 0.5$ 时不同时刻颗粒 ISD (a) $t = 3000dt$; (b) $t = 5000dt$; (c) $t = 7000dt$; (d) $t = 9000dt$

所占比例增大, 是因为小颗粒消失的同时大颗粒在逐渐长大. 当 $t = 9000dt$ 时, 界面形状主要分布在 1, 2 区域内, 区域 1 中的界面主要为颗粒没有连接处的椭球形界面, 区域 2 界面主要分布于颗粒的连接处, 这些界面形状可以从图 12 中清晰地看到, 不同界面处的平均曲率用不同颜色标出.

对比图 7 和图 8, 及图 10 和图 11, 可以发现, 低固相分数下, 颗粒粗化很快进入稳态, 并呈现出 ISD 的自相似性, 而高固相分数下颗粒粗化进入稳态较慢. 在图 8 和图 11 中虽然没有出现 ISD 的自相似性, 但通过观察可以发现概率密度峰的位置、大小以及基本形状随着粗化的进行逐渐趋于稳定, 因此可推测随着时间的延长, 在高固相分数下 ISD 也将出现自相似性.

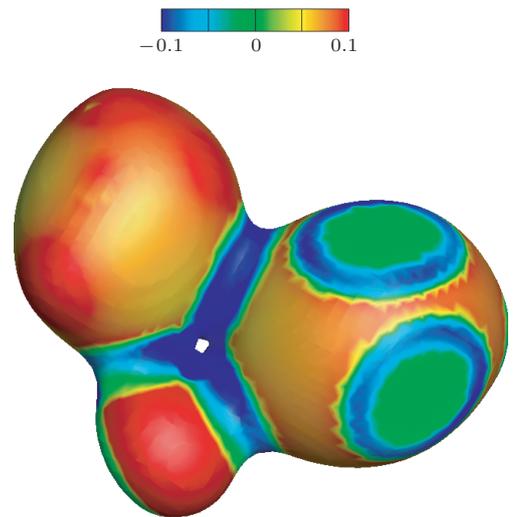


图 12 局部颗粒形貌及颗粒平均曲率, 初始固相分数 $f_p = 0.5$ 颗粒间有连接, $t = 9000dt$

理论上三维主曲率分布自相似时, 平均半径分布也应具有自相似性. 但是由于计算条件的限制, 本文中计算的颗粒数较少, 对所有颗粒的半径进行统计分析时, 发现其统计学平均性较差. 而主曲率分布的统计针对的是界面上的每个点, 其数目远远大于颗粒数目, 统计平均性较好, 因此本文仅给出了三维主曲率分布的统计结果.

4 结 论

本文采用多相场模型模拟了液-固两相体系中多颗粒的粗化过程, 分析了固相体积分数及颗粒间合并连接状况对粗化过程中颗粒界面形状分布及粗化速率常数的影响. 得出如下结论:

1) 粗化速率与固相体积分数密切相关, 颗粒无连接情况下, 粗化速率常数随固相体积分数的增加而增大, 当颗粒间存在连接时, 这种增长趋势将变缓;

2) 高固相分数下, 颗粒间存在连接时, 随着粗化的进行高曲率双曲形界面所占比例下降, 低曲率椭球形界面所占比例上升;

3) 颗粒组织粗化演化过程达到稳态后, 界面形状分布具有自相似性, 低固相分数下界面形状分布出现自相似较快, 而高固相分数下则需要较长时间.

参考文献

- [1] Lifshitz I M, Slyozov V V 1961 *J. Phys. Chem. Solids* **19** 35
- [2] Wagner C 1961 *Z. Elektrochem.* **65** 581
- [3] Bower T F, Brody H D, Flemings M C 1966 *Trans. Metall. Soc. AIME* **236** 624
- [4] Marsh S P, Glicksman M E 1996 *Acta Mater.* **44** 3761
- [5] Poirer D R, Ganesan S, Andrews M, Ocansey P 1991 *Mater. Sci. Eng. A* **148** 289
- [6] Whisler N J, Kattamis T Z 1972 *Cryst. Growth* **15** 20
- [7] Mendoza R, Alkemper J, Voorhees P W 2003 *Metall. Mater. Trans. A* **34** 481
- [8] Mendoza R, Savin I, Thornton K, Voorhees P W 2004 *Nature Mater.* **3** 385
- [9] Mendoza R, Thornton K, Savin I, Voorhees P W 2006 *Acta Mater.* **54** 743
- [10] Kammer D, Voorhees P W 2006 *Acta Mater.* **54** 1549
- [11] Fife J L, Voorhees P W 2009 *Acta Mater.* **57** 2418
- [12] Karen Y C, Wiegart C, Wang S, Chu Y S, Liu W J 2012 *Acta Mater.* **60** 4972
- [13] Wang Z J, Wang J C, Yang G C 2010 *Chin. Phys. B* **19** 078101
- [14] Chen Y, Kang X H, Xiao N M, Zheng C W, Li D Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S124 (in Chinese) [陈云, 康秀红, 肖纳敏, 郑成武, 李殿中 2009 物理学报 **58** S124]
- [15] Zhao D W, Li J F 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7094 (in Chinese) [赵达文, 李金富 2009 物理学报 **58** 7094]
- [16] Zhao D P, Jing T, Liu B C 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1373 (in Chinese) [赵代平, 荆涛, 柳百成 2003 物理学报 **52** 1373]
- [17] Warren J A, Murray B T 1996 *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **4** 215
- [18] Fan D, Chen S P, Chen L Q, Voorhees P W 2002 *Acta Mater.* **50** 1895
- [19] Wang K G, Ding X, Chang K, Chen L Q 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 061801
- [20] Kim S G 2007 *Acta Mater.* **55** 6513
- [21] Wang T, Li J J, Wang J C 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 106402 (in Chinese) [王陶, 李俊杰, 王锦程 2013 物理学报 **62** 106402]
- [22] Kailasam S K, Glicksman M E, Mani S S, Fradkov V E 1999 *Metall. Mater. Trans. A* **30** 1541

Phase field modeling of the evolution of partial interface shape distribution during coarsening*

Luo Hai-Bin Li Jun-Jie Ma Yuan Guo Chun-Wen Wang Jin-Cheng†

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

(Received 24 July 2013; revised manuscript received 23 September 2013)

Abstract

Three-dimensional simulations of particles coarsening in a solid-liquid two-phase system are investigated using the multiphase-field model. The evolution of the interface shape distribution during coarsening is analyzed. And the influences of the volume fraction on the interface shape distribution and coarsening rate are studied under different coalescence conditions. The simulation results show that the influence of volume fraction on the change of coarsening rate is delayed when there exists coalescence between solid particles under high volume fraction. Moreover, with the evolution of coarsening, proportion of the hyperboloid with high curvature decreases and the proportion of ellipsoid with low curvature increases. No matter whether the coalescence between particles occurs, the interface shape distribution has self-similarity after a period of time of evolution. But it will take a longer time for the system to reach the steady state with the increasing of volume fraction.

Keywords: coarsening, phase field method, three dimensional simulation, curvatures of interface

PACS: 64.70.dm, 81.30.-t, 82.20.wt

DOI: [10.7498/aps.63.026401](https://doi.org/10.7498/aps.63.026401)

* Projet supported by National Natural Science foundation of China (Grant Nos. 51071128, 51101124), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB610401), and the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20116102120018).

† Corresponding author. E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn