

镁基合金自由枝晶生长的相场模拟研究

段培培 邢辉 陈志 郝冠华 王碧涵 金克新

Phase-field modeling of free dendritic growth of magnesium based alloy

Duan Pei-Pei Xing Hui Chen Zhi Hao Guan-Hua Wang Bi-Han Jin Ke-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 060201 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.060201

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.060201>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I6>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

黏弹性问题的改进的复变量无单元 Galerkin 方法

Improved complex variable element-free Galerkin method for viscoelasticity problems

物理学报.2014, 63(18): 180203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.180203>

压缩感知理论在矩量法中的应用

Application of compressed sensing theory in the method of moments

物理学报.2014, 63(12): 120202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.120202>

用于脉冲等离子体推力器烧蚀过程仿真的新型机电模型

A modified electromechanical model with one-dimensional ablation model for numerical analysis of the pulsed plasma thruster

物理学报.2013, 62(21): 210202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.210202>

时域磁场积分方程时间步进算法稳定性研究

Investigation of the stability of time-domain magnetic field integral equations based on marching on-in time algorithm

物理学报.2013, 62(9): 090206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.090206>

基于电缆-无线耦合的随钻测井信号传输新方法及其数值模拟研究

Numerical modeling of the signal transmission by cables and electromagnetic coupling for logging while drilling

物理学报.2013, 62(6): 060202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.060202>

镁基合金自由枝晶生长的相场模拟研究*

段培培 邢辉[†] 陈志[‡] 郝冠华 王碧涵 金克新

(西北工业大学应用物理系, 陕西省凝聚态结构与性质重点实验室, 西安 710129)

(2014年9月9日收到; 2014年10月15日收到修改稿)

利用定量相场模型, 以Mg-0.5 wt.%Al合金为例模拟了基面((0001)面)内镁基合金的等温自由枝晶生长过程. 通过研究该合金体系数值模拟的收敛性, 获得了最优化值耦合参数 $\lambda = 5.5$ 及网格宽度 $\Delta x/W_0 = 0.4$, 并在该参数下系统研究了各向异性强度和过饱和度对枝晶尖端生长速度、尖端曲率半径、Péclet数及稳定性常数 σ^* 的影响. 结果表明, 由微观可解性理论得到的稳定性系数 σ^* 与 ε_6 拟合值 $\sigma^* \propto \varepsilon_6^{1.81905}$, 更接近理想值 $\sigma^*(\varepsilon_6) \propto \varepsilon_6^{1.75}$. 此外, 当过饱和度 $\Omega < 0.6$ 时, 稳定性系数 σ^* 不随 ε_6 的变化而变化, 而当 $\Omega > 0.6$ 时, 稳定性系数 σ^* 随着 ε_6 的增加而减小. 这反映了枝晶的生长由扩散控制向动力学控制的转变. 随着过饱和度的增加, 枝晶形貌由雪花状枝晶向圆状枝晶转变.

关键词: 相场模拟, 镁基合金, 枝晶生长

PACS: 02.60.Cb, 81.10.Aj, 81.30.Bx, 81.30.Fb

DOI: 10.7498/aps.64.060201

1 引言

镁基合金材料是理想的轻型合金材料, 具有质量轻, 比强度和比刚度高及可回收再利用的优点^[1], 有望取代铝合金、锌合金和塑料等而被广泛地应用于航空航天工业、国防军工、运输工业及电子通信工业等领域^[2-5]. α -Mg相枝晶是镁基合金材料中最普遍且最重要的微观组织结构, 是影响其力学性能的重要因素. 镁基合金是典型的密排六方结构晶体, 但由于受到晶体学特征的影响, 它的枝晶较为发达, 粗大的枝晶导致其机械性能较差, 所以研究镁基合金枝晶结构的形成规律及主动控制既是一个凝固理论研究中的基础问题, 也是一个具有极大应用价值的工业问题.

在自由枝晶生长中存在两个重要的极限条件. 一方面, 在纯金属凝固过程中, 枝晶的生长只受到液相中热扩散的控制; 另一方面, 在合金凝固过程

中, 由于热扩散率与溶质扩散率之比较大(一般在 10^2-10^4 量级), 因此常常假设枝晶是在等温条件下发生的, 即枝晶生长只受到溶质扩散的控制. 在合金凝固过程中, 随着溶质的增加, 将出现两个有趣的效应: 少量的溶质的加入将使枝晶尖端失稳, 这将导致枝晶尖端曲率半径的降低与枝晶生长速度的提高; 随着溶质含量的进一步增加, 枝晶的生长逐渐受到溶质扩散的影响, 这将导致枝晶尖端生长速度的降低. 在本文的研究中, 我们只关注纯溶质控制的枝晶生长过程. 枝晶尖端生长速度与尖端曲率半径是枝晶生长过程中两个重要的物理量, 也是许多理论与实验研究的重点. 在枝晶生长理论模型方面, Ivantsov和Nauk^[6]的模型表明, 枝晶在过冷熔体中生长的解析解是简并的, 该简并中过冷度与Péclet数相关联, 而非尖端生长速度, 其中 $P_c = VR/(2D)$, D 是热扩散率或溶质扩散率. 结果表明, 在给定过冷度条件下, 可以得到无穷多组解, 即满足 $VR = \text{常数}$. 而事实上随后的微观可解

* 中央高校基本科研业务费专项资金(批准号: 3102014KYJD026)、国家自然科学基金(批准号: 61078057, 51172183, 6147130, 11102164)、陕西省自然科学基金(批准号: 2012JQ8013)、西北工业大学专项研究基金(批准号: NPU-FFR-JC20110273, JC2011155, JC20120246)和西北工业大学新人新方向(批准号: 13GH014602)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: huixing@nwpu.edu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: c2002z@nwpu.edu.cn

理论 (microscopic solvability theory, MST) [7,8] 提供了一个对于枝晶生长模式选择更加可信的机理. 微观可解性理论在 Ivantsov 模型的基础上引入了界面曲率效应, 并将界面形状和生长速度作为熔体的过冷度函数. 其简化模型的数值计算和分析表明, 为得到一个稳态生长的枝晶尖端, 必须考虑界面能各向异性. 界面能各向异性的存在使系统存在一系列离散的稳态自洽解, 其中只有对应最大生长速度的解才是线性稳定的. 从而确定枝晶尖端生长速度 V 和半径 R 的关系, 即

$$R^2V = 2Dd_0/\sigma^*, \quad (1)$$

这里 σ^* 是稳定性常数, 在过冷度较小 (小 Péclet 数) 条件下, 满足 $\sigma^*(\varepsilon_6) \propto \varepsilon_6^{1.75}$, 其中 ε_6 是各向异性强度.

微观可解理论预测的结果表明, 毛细管力能够打破 Ivantsov 模型所预测的简并关系, LGK (Lipton-Glicksman-Kruz) [9,10] 模型首先预测了在过饱和熔体中无侧枝的针状枝晶生长达到稳态后的尖端生长速度与尖端半径. 随后的 LKT (Lipton-Kurz-Trivedi) 模型 [11] 将 LGK 模型推广到了高速生长的条件下. 上述理论研究给出的结果已经在立方晶体枝晶生长的实验研究中得到了验证. 尽管该理论并不仅局限于立方系晶体, 也适用于 hcp 系晶体, 但相关的实验研究并不多见. 由于金属是不透明的, 除了少数合金材料的凝固过程能够通过同步辐射的方法进行观测外, 大多数金属的凝固过程很难被实时观测. 因此, 寻求一种更为有效的方法来研究 hcp-Mg 相枝晶生长模式的选择是该研究领域的重要问题之一.

随着计算数学以及计算机技术的迅猛发展, 数值模拟逐渐成为一种可以与实验研究、理论研究并行的科学研究方法. 近年来, 相场方法逐渐成为一个被广泛接受的、应用于研究复杂界面形貌演化的数值模拟技术 [12-19], 特别是 1996 年 Karma 与 Rappel (KR) 定量相场模型 [20] 的提出, 使相场模拟真正进入了定量模拟阶段. 该模型现已被推广到了定量模拟合金凝固 [21] 上, 并广泛应用于凝固过程中三维胞晶生长 [22]、枝晶间距的历史相关性 [23]、倾斜枝晶生长 [24] 及枝晶-海藻型枝晶转变等 [5] 的数值模拟研究中. 由于可以有效地避免界面跟踪而带来的麻烦并能简便地将界面曲率效应、表面张力各向异性和动力学效应包含在模型方程中, 国内外研究者已经开始使用相场模拟的方法研

究 hcp-Mg 相枝晶组织的演化, 并取得了一定的成果. Wang 等 [25] 利用相场方法完整再现了三维等轴 hcp-Mg 相枝晶生长形貌; Eiken [26] 利用相场方法初步讨论了 Mg 基单相合金定向凝固过程中晶粒之间的竞争; Provatas 等 [1,5] 研究了定向凝固过程中基面内 hcp-Mg 相枝晶生长形貌的选择及其微观长度尺度的演化. 虽然国内外研究者已在 hcp-Mg 相枝晶生长的数值模拟研究中取得了一定的进展, 但一些基本的问题如枝晶尖端生长模式的选择及 LGK 与 LKT 理论是否能很好地应用于 hcp 系晶体的枝晶生长中仍需要进一步的探讨.

基于以上分析, 本文利用定量相场模拟, 以 Mg-0.5 wt.%Al 合金为例模拟研究了基面上镁基合金凝固过程中纯溶质控制的二维自由枝晶的生长, 主要研究过饱和度和各向异性强度 ε_6 与枝晶尖端半径 R 、尖端生长速度 V , Péclet 数和稳定性常数 σ^* 的函数关系. 通过对比由 MST 理论与 LGK 理论、LKT 理论分别得到的 σ^* 值, 直接利用数值模拟的方法验证 LGK 与 LKT 理论在 hcp 晶体生长中的应用, 并进一步讨论 hcp-Mg 相枝晶生长形貌随过饱和度的变化关系. 通过本文的研究, 我们希望能够完善该类合金枝晶生长理论, 为该类合金铸造过程的控制理论提供指导.

2 模型

2.1 相场模型及数值求解

在稀溶液近似下, Mg-Al 合金相图中富 Mg 一侧固液相限斜率可以近似成直线, 因此满足函数关系 $c_1 = kc_s$, 其中 $c_s(c_1)$ 是界面处固(液)相侧的溶质浓度, k 是分配系数. 假设其他材料物性均为常数, 并忽略固相中溶质的扩散, 这将使描述晶体生长的模型简化为单边模型. Karma [27] 与 Echebarria 等 [21] 给出的描述稀溶液近似条件下的二元合金枝晶生长的相场方程和溶质场方程可以表示成如下形式:

$$\begin{aligned} & \tau(\hat{n}) [1 + (1 - k)U] \frac{\partial \phi}{\partial t} \\ &= \phi(1 - \phi^2) - \lambda(1 - \phi^2)^2(U + \theta_{\text{sys}}) \\ & \quad + \nabla \cdot \{ [W(\hat{n})]^2 \nabla \phi \} - \frac{\partial}{\partial x} \left[W(\hat{n}) W'(\hat{n}) \frac{\partial \phi}{\partial y} \right] \\ & \quad + \frac{\partial}{\partial y} \left[W(\hat{n}) W'(\hat{n}) \frac{\partial \phi}{\partial x} \right], \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} & \left(\frac{1+k}{2} - \frac{1-k}{2} \phi \right) \frac{\partial U}{\partial t} \\ &= \nabla \left(D \frac{1-\phi}{2} \nabla U + \mathbf{j}_{\text{at}} \right) \\ &+ \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} (\phi [1 + (1-k)U]), \end{aligned} \quad (3)$$

其中

$$\begin{aligned} U &= \frac{1}{1-k} \left[\frac{2c/c_1^0}{1+k - (1-k)\phi} - 1 \right], \\ W(\hat{n}) &= W_0 a(\hat{n}), \\ \tau(\hat{n}) &= \tau_0 a^2(\hat{n}); \end{aligned}$$

U 是无量纲化的过饱和度; ϕ 是相场变量, 用来区分固相 ($\phi = 1$) 和液相 ($\phi = -1$); θ_{sys} 是无量纲化的温度; c_∞ 是平均溶质浓度, $c_1^0 = c_\infty/k$ 是固-液界面液相一侧的溶质浓度; λ 是耦合系数, 决定了界面宽度的参数; τ_0 和 W_0 是数值模拟中的时间尺度与空间尺度. 因为本文忽略了动力学效应, 所以 τ_0 和 W_0 可以通过以下两个关系与实际物理量联系起来: $W_0 = d_0 \lambda / a_1$ 和 $\tau_0 = a_2 \lambda W_0^2 / D$, 这里 a_1, a_2 是数值计算常数, 其值依赖于自由能函数的选择, 这里分别为 0.8829 和 0.6267. $\mathbf{j}_{\text{at}} = \frac{1}{2\sqrt{2}} [1 + (1-k)U] \frac{\partial \phi}{\partial t} \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|}$ 是反溶质截留项, 加入该项可以消除由于人工延拓的界面而产生的不正常的溶质截留效应. 此外, 本文的数值模拟不包含热噪声, 当过饱和度较大时, 网格的数值噪声将导致枝晶侧枝的产生. 一般情况下, 在合金凝固过程中, 热扩散系数远大于溶质扩散系数, 因此将系统的无量纲温度场设成一个常数 (本文模型中的无量纲温度场设为 $\theta_{\text{sys}} = 0$) 是合理的, 即二元合金等温凝固. 各向异性函数是决定枝晶生长形貌的重要因素, 镁基合金是密排六方晶格结构 (hcp), 与立方晶系相比, hcp 系晶体的固-液界面能各向异性更加复杂, 其枝晶也往往呈现出多变的结构. hcp 系晶体基面 ((0001) 面) 内的各向异性函数描述了密排六方晶格空间点群的球谐函数 [28] 在基面内的投影, 该球谐函数可以表示成:

$$\begin{aligned} \gamma(\theta, \phi) &= \gamma_0 (1 + \varepsilon_{20} y_{20}(\theta, \phi) + \varepsilon_{40} y_{40}(\theta, \phi) \\ &+ \varepsilon_{60} y_{60}(\theta, \phi) + \varepsilon_{66} y_{66}(\theta, \phi) \\ &+ \dots), \end{aligned} \quad (4)$$

其中 $\varepsilon_{20}, \varepsilon_{40}, \varepsilon_{60}$ 和 ε_{66} 是衡量每个球谐函数贡献的常数, 且每个球谐函数为

$$y_{20}(\theta, \phi) = \sqrt{5/16\pi} [3 \cos^2 \theta - 1],$$

$$\begin{aligned} y_{40}(\theta, \phi) &= 3 / (16\sqrt{\pi}) [35 \cos^4 \theta \\ &- 30 \cos^2 \theta + 3], \\ y_{60}(\theta, \phi) &= \sqrt{13} / (32\sqrt{\pi}) [231 \cos^6 \theta \\ &- 315 \cos^4 \theta + 105 \cos^2 \theta - 5], \\ y_{66}(\theta, \phi) &= \sqrt{6006} / 64\sqrt{\pi} [\sin^6 \theta \cos(6\phi)], \end{aligned} \quad (5)$$

这里 θ 和 ϕ 是球坐标里的倾斜角和方位角. 投影在基面上的二维表面能各向异性函数 [29] 可以通过将 $\theta = \pi/2, \varepsilon_{20} = -0.026$ 和 $\varepsilon_{66} = 0.003$ 代入 (4) 式得到, 其中 ε_{40} 和 ε_{60} 的贡献也可以忽略 [29]. 然后可以得到 $a(\hat{n}) = \gamma(\phi) = 1 + \varepsilon_0 + \varepsilon_6 \cos(6\phi)$, 其中 ε_0 和 ε_6 分别为 0.008 和 0.002. 本文以 Mg-0.5 wt.%Al 合金为研究对象, 其他所需物性参数参考文献 [30], 如表 1 所列.

表 1 含 Mg-0.5 wt.%Al 的镁铝合金凝固过程参数 [30]

合金参数	数值
纯镁熔点 T_M/K	923
Al 在液相中的扩散系数 $D/m^2 \cdot s^{-1}$	1.8×10^{-9}
Al 固-液界面溶质分配系数 k	0.4
Gibbs-Thomson 系数 Γ Mg-0.5 wt.%Al/ $K \cdot m^{-1}$	6.2×10^{-7}
液相线斜率 $ m /(K \cdot \text{wt.}\%^{-1})$	5.5

对相场方程和溶质场控制方程 (2) 与 (3) 采用均匀网格的有限差分法求解. 计算采用 Zero-Neumann 边界条件, 在边界上有 $\partial \phi / \partial n = 0, \partial U / \partial n = 0$. 为减少相场法模拟的计算量, 本文的模拟区域采用矩形区域, 1/4 个初始核位于计算区域的左下角. 在相场模拟中, 耦合参数 λ 反映了界面厚度的大小. 本文的研究首先测试了在该合金体系数值模拟中的数值收敛性, 选择了合适的耦合参数 λ 与空间步长应用于数值模拟研究中, 计算的时间步长 $\Delta t / \tau_0$ 受到空间步长 $\Delta x / W_0$ 和耦合参数 λ 的限制, 即 $\Delta t / \tau_0 \leq (\Delta x / W_0)^2 / (4a_2^2 \lambda^2)$.

2.2 稳定性系数的求解

临界稳定性原理指出了枝晶尖端分叉不稳定性与侧向分支不稳定性之间的临界状态, 该状态取决于无量纲参数 σ^* . 而对于计算稳定性常数 σ^* , 本文不仅利用微观可解理论的定义 (1) 式得到, 也可利用 LGK 与 LKT 定义式得到. 对于在固相中无溶质扩散的情况, 在 LGK 与 LKT 模型中稳定性常数可以写成如下形式:

$$\sigma^* = \frac{d_0}{\rho \left\{ \xi_t P_t + 2\xi_c P_c \frac{|m| c_\infty}{\Delta T_{\text{hyp}}} \left[\frac{1-k}{1-(1-k)\Delta c} \right] \right\}}, \quad (6)$$

其中 P_t 和 P_c 分别为热 Péclet 数和溶质 Péclet 数, 系数 ξ_t 和 ξ_c 在 LGK^[9,10] 定义式中简单为 1, 但在 LKT^[11] 定义式中为

$$\xi_t = 1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{\sigma^* P_t^2}}},$$

$$\xi_c = 1 + \frac{2k}{1 - 2k - \sqrt{1 + \frac{1}{\sigma^* P_c^2}}},$$

且 P_t 与 P_c 满足关系式 $P_c = Le P_t$, 但在镁基合金凝固中热扩散系数 $\alpha \gg D$, 而 $Le = \alpha/D_1$, 故 P_t 趋于 0. 则 LGK 与 LKT 定义式可以分别简化为

$$\sigma^* = \frac{d_0 \Delta T_{\text{hyp}}}{2\rho P_c |m| c_\infty \left[\frac{1-k}{1-(1-k)\Delta c} \right]}, \quad (7)$$

$$\sigma^* = \frac{d_0 \Delta T_{\text{hyp}}}{2\rho P_c |m| c_\infty \left[\frac{1-k}{1-(1-k)\Delta c} \right]} \times \left(1 + \frac{2k}{1 - 2k - \sqrt{1 + \frac{1}{\sigma^* P_c^2}}} \right)^{-1}, \quad (8)$$

其中 $\Delta T_{\text{hyp}} = L/C_p$, $\Delta c = U_i/[1 - (1-k)U_i]$, U_i 是固液界面液相一侧的溶质过饱和度. 对于 (7) 式, 将相场模拟中得到的稳态 Péclet 数、尖端半径 ρ 及 U_i 代入即可得到 σ^* ; 而对于 (8) 式, 将相场模拟中得到的稳态 Péclet 数、尖端半径 ρ 及 U_i 代入后, 可利用非线性方程求根的二分法求得 σ^* .

3 结果与讨论

3.1 典型枝晶形貌

图 1 为 Mg-0.5 wt.%Al 合金在过饱和度为 $\Omega = (c_1 - c_\infty)/(c_1 - c_s) = 0.65$ 和等温温度为 $\theta_{\text{sys}} = 0$ 条件下基面上稳态镁基合金枝晶的生长形貌和液相、固相的溶质分布, 黑色线为 $\phi = 0$ 的等值线, 代表了固液界面的轮廓, 渐变的颜色代表溶质的浓度场分布. 计算区域为 $2000d_0 \times 2000d_0$, 耦合参数 $\lambda = 5.5$, 网格宽度 $\Delta x/W_0 = 0.4$. 有关合适的耦合参数 λ 与空间步长 $\Delta x/W_0$ 的选择, 将在 3.2 节中具体讨论. 从图中可以看出, 基面上充分生长

的 hcp-Mg 相枝晶呈现出六个最优生长方向, 是典型的雪花状枝晶, 这是各向异性函数作用的结果. 由于 hcp-Mg 相枝晶在生长过程中发生的溶质再分配, 溶质在固液界面液相一侧出现富集, 在枝晶根部溶质富集度都高于枝晶尖端部位, 这是曲率效应作用的结果. 当然, 枝晶生长形貌不仅取决于各向异性函数的选择, 也与系统的过饱和度密切相关, 有关系统过饱和度对枝晶生长形貌的影响, 将在 3.4 节中具体讨论.

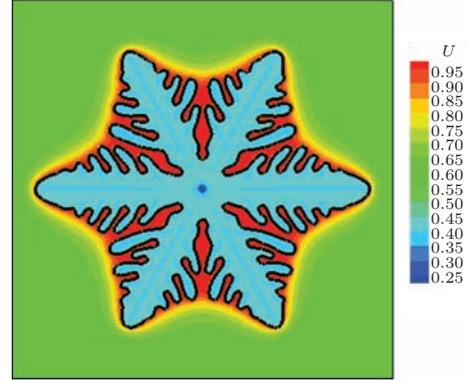


图 1 (网刊彩色) 模拟的 Mg-0.5 wt.%Al 合金在 $\Omega = 0.65$ 和 $\theta_{\text{sys}} = 0$ 时稳态枝晶生长形貌

3.2 数值收敛性分析

由 $W_0 = d_0 \lambda / a_1$ 可知, 界面厚度随着 λ 的增加而增加, 较大的界面厚度将使数值计算的结果偏离真实值, 但较小的界面厚度将导致计算时间大大增加, 因此在数值计算中选择合适的界面厚度使之既能满足计算精度的要求, 也能兼顾计算效率是相场模拟的基础问题. 此外, 计算区域的网格宽度也将影响数值模拟计算的精确度. 之前采用 Karma 和 Echebarria 模型研究的主要是基于立方晶系的晶体, 如 SCN 基合金, Al 合金和 Ni 基合金等, 而本文采用该模型研究的是 hcp 晶系的 Mg 基合金, 由于所研究的晶系以及各向异性强度的不同, λ 的适用范围也会不同, 因此本节需要首先测试不同界面厚度与网格宽度条件下基面内 hcp-Mg 相枝晶生长相场模拟计算结果的收敛性, 进而选择合适的界面厚度与网格宽度应用于本研究的数值计算中. 所有条件下的模拟区域均为 $2000d_0 \times 2000d_0$, 初始晶核半径为 $80d_0$. 当枝晶生长达到稳态后, 计算得到每种情况下枝晶尖端生长速度 Vd_0/D 、枝晶尖端曲率半径 ρ/d_0 , Péclet 数和稳定性系数 σ^* . 图 2 中 (a)—(d) 分别为模拟得到的 Mg-0.5 wt.%Al 合金在 $\Omega = 0.55$ 与 $\theta_{\text{sys}} = 0$ 条件下在三种不同的

网格宽度情况下枝晶尖端稳态生长速度、尖端半径、Péclet 数和稳定性系数随耦合参数 λ 的变化. 如图 2(a) 所示, 在所有的情况下, 随着耦合参数 λ 的增加尖端生长速度总是先增大后减小, 最大值出现在 $\lambda = 5.5$ 附近, 该结果与 Ohno^[31] 的研究结果是一致的. 尖端生长速度的模拟结果也表明, 在这三种网格宽度的情况下, 网格宽度对尖端生长速度的模拟结果几乎没有影响. 图 2(b) 显示了尖端半径在三种不同的网格宽度的条件下随界面厚度的变化. 从图中可以看出, 尖端半径随耦合参数变化的最小值也出现在 $\lambda = 5.5$ 附近. 随着耦合参数 λ

的增加, 在三种网格宽度的条件下的尖端半径的差别逐渐增大. 由图 2(c) 可知, 在所有情况下, Péclet 数随 λ 的增大而增大, 且随网格宽度的增大, 三种不同网格情况下的 Péclet 数之间的差别也越来越大. 在图 2(d) 中, 稳定性系数 σ^* 随 λ 的增加均呈现先增加后急剧减小的趋势, 对于 $\Delta x/W_0 = 0.4$, 在 $\lambda < 5.5$ 时 σ^* 的增加坡度较缓, 可近似为不变. 因此, 为了得到较为精确的结果, 在本文的数值模拟中, 我们选择耦合参数 $\lambda = 5.5$ 和网格宽度 $\Delta x/W_0 = 0.4$.

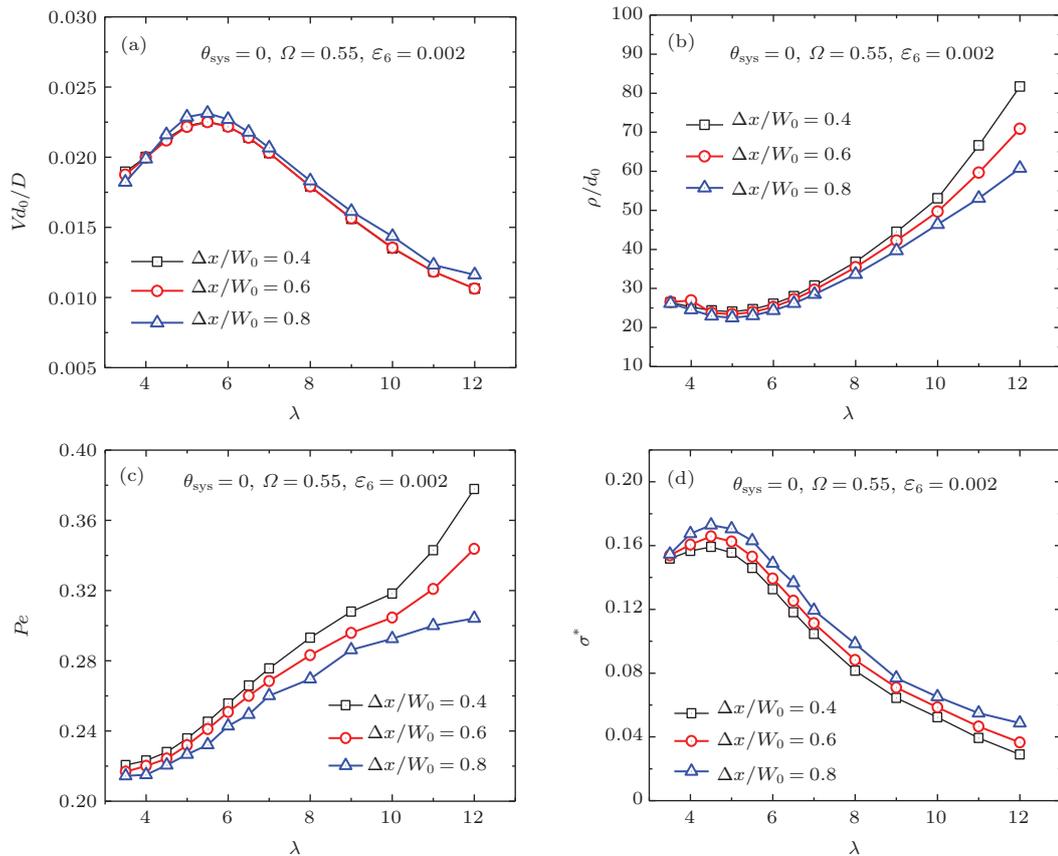


图2 (网刊彩色) 不同网格宽度下, (a) 枝晶生长速度 Vd_0/D 随 λ 的变化, (b) 枝晶尖端半径 ρ/d_0 随 λ 的变化, (c) Péclet 数随 λ 的变化, (d) 稳定性系数 σ^* 随 λ 的变化

3.3 各向异性对枝晶生长的影响

在数值模拟中, 通常采用 ϵ 表示固液界面处的界面动力学和表面张力的各向异性程度, 它反映的是原子和分子之间的平均结合能与局部界面动力学方向性的依赖程度, 对枝晶生长方向的选择起着重要作用. 图 3 描述的是 $\Omega = 0.65$ 时不同各向异性强度下枝晶稳态时的尖端生长速度、尖端半径、Péclet 数和稳定性系数值的变化. 图 3(a), (d) 显示

枝晶尖端生长速度 Vd_0/D 和稳定性系数随各向异性单调增加, 而 (b), (c) 则显示枝晶尖端半径 ρ/d_0 和 Péclet 数随 ϵ_6 增加而单调减小. 图 3(d) 中通过非线性拟合得到的稳定性系数 σ^* 与 ϵ_6 函数关系为 $\sigma^* \propto \epsilon_6^{1.81905}$, 其中红色虚线为 $\sigma^*(\epsilon_6) \propto \epsilon_6^{1.75}$ 的参考线, 可以看出模拟所得数据与红色虚线几乎一致. 图 3 显示模拟所得结果符合 MST 理论的预测, 表明相关理论结果同样适用于 hcp 系晶体枝晶生长模式的选择.

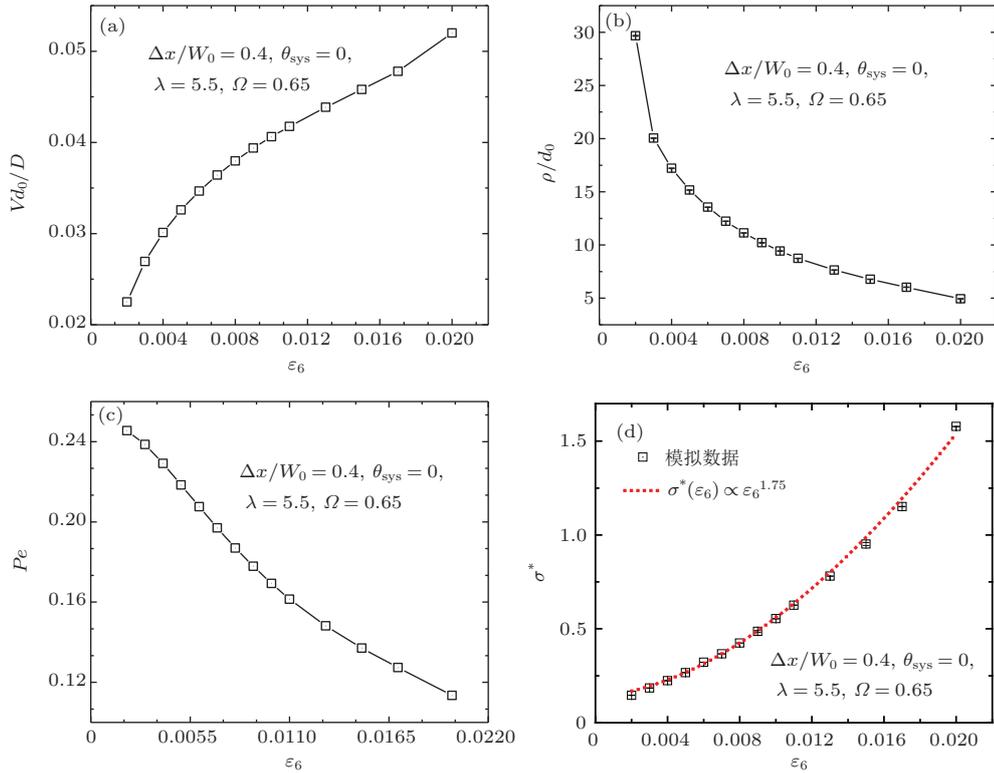


图3 (网刊彩色) $\Omega = 0.65$, $\lambda = 5.5$ 时枝晶稳态尖端参数随 ε_6 的变化 (a) 生长速度; (b) 半径; (c) Péclet 数; (d) 稳定性系数 σ^*

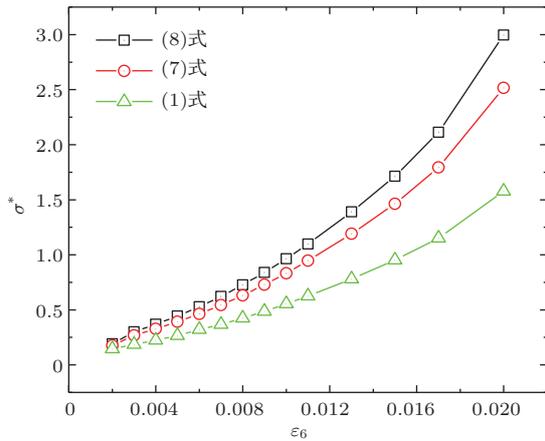


图4 (网刊彩色) 由 LGK, LKT 和 MST 的不同定义式得到的 σ^* 值随 ε_6 的变化

为了进一步研究 LGK 与 LKT 理论能否很好地应用于 hcp 系晶体的枝晶生长中, 图4给出了 $\Omega = 0.65$, $\lambda = 5.5$ 时由 LGK, LKT 和 MST 的不同定义式得到的 σ^* 值随 ε_6 的变化. 从图4中可以得到三种定义式得到的 σ^* 值均随 ε_6 的增加而单调增大, 且在较小的 ε_6 值时三种定义式得到的 σ^* 值较为接近, 但在 ε_6 增大时, 三种定义式得到的 σ^* 值之间差别也越来越大. 由 LGK 与 LKT 定义式得到的 σ^* 值在 ε_6 较小时相差不大, 但随 ε_6 得增大, 二者之间的差别越来越大. 从 ξ_t 和 ξ_c 定义式可以分析得

出导致这些差别的原因. 当 ε_6 和 σ^* 较小时, LKT 定义的 ξ_t 和 ξ_c 式中第二项近似为 0, 则 ξ_t 和 ξ_c 均为 1, 等于 LGK 中的 ξ_t 和 ξ_c , 此时两种理论关于 σ^* 的定义式近似相同, 值也相近, 但随 ε_6 的增大, σ^* 增大, 差距也增大. 拟合三种定义式得到的 σ^* 与 ε_6 得出, LGK, LKT 和 MST 理论得到的拟合系数分别为 1.94145, 1.89683 和 1.81905, 与之前得到的 1.75 相比, 由 MST 理论定义式得到的 σ^* 值更接近理论解 $\sigma^*(\varepsilon_6) \propto \varepsilon_6^{1.75}$.

3.4 过饱和度对枝晶生长的影响

图5为 $\varepsilon = 0.002$, $\lambda = 5.5$ 时枝晶稳态尖端参数随过饱和度 Ω 的变化. 从图5(a), (c) 中可得出枝晶尖端速度和 Péclet 数随过饱和度 Ω 整体单调增加, 但图5(b) 显示枝晶尖端半径随过饱和度 Ω 先快速减小, 然后在 $\Omega > 0.60$ 时趋于平缓, 此时半径减到最小, 并不再随 Ω 的变化而变化. 图5(d) 为由微观可解性理论定义式得出的稳定性系数 σ^* 随过饱和度 Ω 的变化, 在 $\Omega < 0.60$ 时, σ^* 值先缓慢下降后又回升, 在其允许的误差范围内可以近似为 σ^* 恒定, 但在 $\Omega > 0.60$ 时, σ^* 值快速下降. 分析图5(a), (b) 也可得出 σ^* 变化的原因: 当 Ω 较小时, 枝晶尖端速度和半径都近似直线增加或减小,

但当 $\Omega > 0.65$ 时, 枝晶尖端速度快速增大, 而枝晶尖端半径却已减到最小且不再随 Ω 的增大而变化, 即较大的 Ω 影响枝晶尖端速度快速增大, 却不能使枝晶尖端半径继续减小, 故此时的 σ^* 的稳定性被破坏, σ^* 值急剧减小. 在枝晶生长中, 除了尖端曲率半径 ρ , 尖端扩散长度 $l = D/2V$ 也是描述和

分析该过程的重要的物理量, 这里 D 是溶质扩散系数, V 是尖端生长速度. 由扩散长度的定义式可知, 随着生长速度的增加, 扩散长度逐渐降低, 即溶质扩散的影响区域逐渐变小, 进而当 $\Omega > 0.6$ 时, 枝晶的生长方式已经逐渐由溶质扩散控制变成动力学控制.

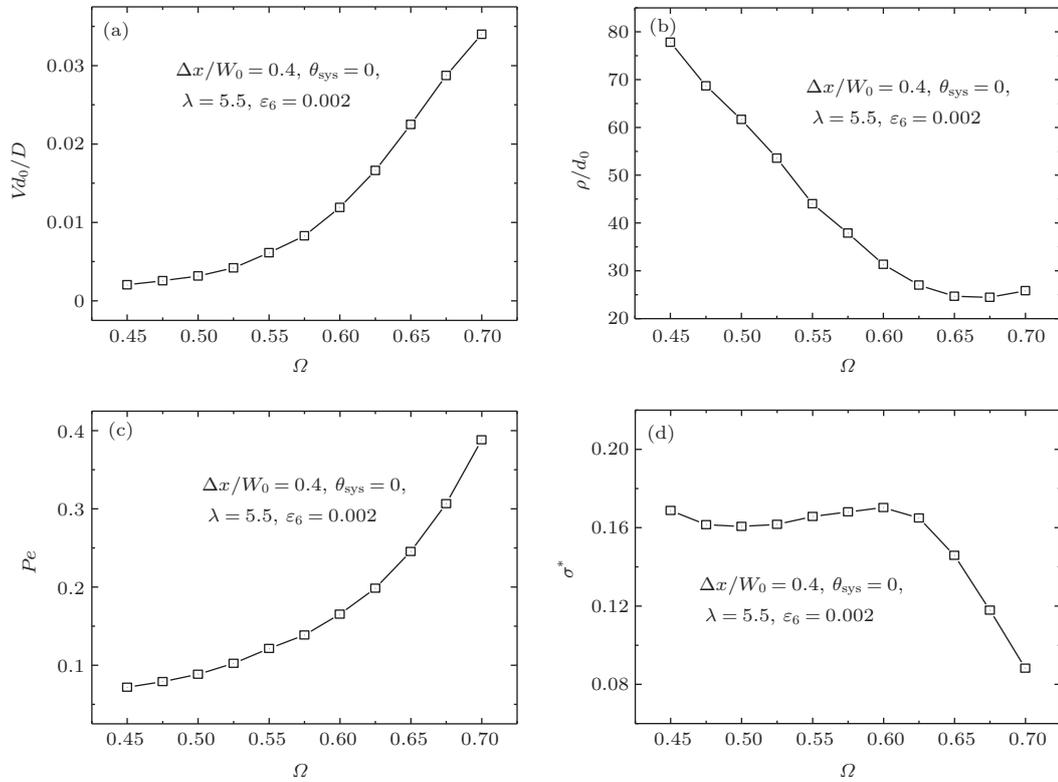


图5 $\varepsilon_6 = 0.002$, $\lambda = 5.5$ 时枝晶稳态尖端参数随过饱和度 Ω 的变化 (a) 生长速度; (b) 半径; (c) Péclet 数; (d) 稳定性系数 σ^*

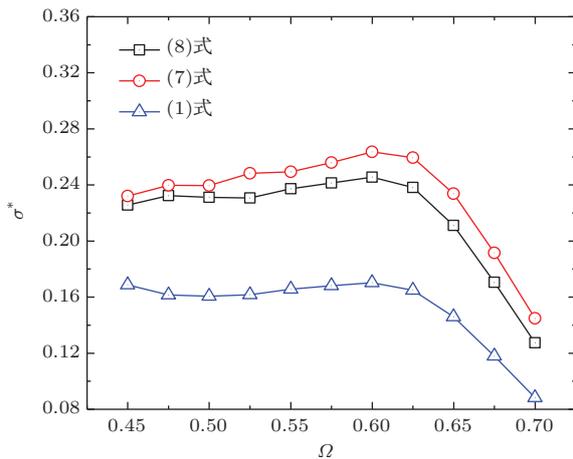


图6 (网刊彩色) $\varepsilon_6 = 0.002$, $\lambda = 5.5$ 时由 LGK, LKT 和 MST 得到的 σ^* 随过饱和度 Ω 的变化

图6为由 LGK, LKT 和 MST 定义式得到的 σ^* , 可以看出, 在 $\Omega < 0.60$ 时, 三条曲线均趋于平缓, σ^* 可近似为常数, 分别约为 0.237, 0.249 和

0.166, 此时枝晶的生长受到纯溶质扩散的控制; 在 $\Omega > 0.60$ 时, 由三种定义式得到的 σ^* 快速减小, 其原因可能为动力学对枝晶生长的控制增强. 对比图7中的不同过饱和度下的枝晶形貌图也可得出, 在 $\Omega > 0.60$ 时, 随着 Ω 的增加, 枝晶形貌由雪花状开始转变为球状晶, 即动力学的控制改变了枝晶形貌, 同时也破坏了枝晶尖端 σ^* 的恒定性.

图7为不同过饱和度条件下枝晶相场界面形貌图. 图7(a)显示在低过饱和度 $\Omega = 0.35$ 下, 晶核生长为没有侧枝的六对称枝晶, 且主枝晶尖端粗大, 而过饱和度的增加, 促使侧枝生长且数目增多, 枝晶最终呈雪花状. 当 Ω 值继续增大时(如图7(e)), 二次枝开始分叉, 并影响了主枝的生长, 使枝晶形貌开始改变, 同时对图5(d), σ^* 也急剧减小. 当 Ω 值增大到 0.85 时, 主枝晶与侧枝的相互竞争使枝晶呈散射状排列生长, 最终枝晶由雪花状转变为圆状.

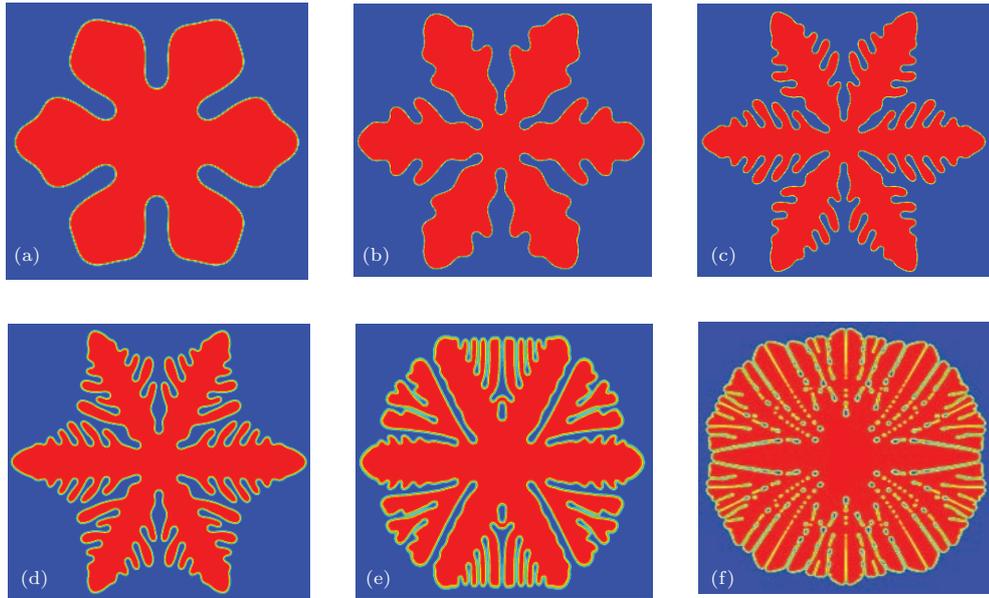


图7 (网刊彩色) 不同 Ω 值 (a) 0.35, (b) 0.45, (c) 0.55, (d) 0.65, (e) 0.75, (f) 0.85 下枝晶相场界面形貌图

4 结 论

1) 本文采用定量的相场模型模拟了 Mg-0.5 wt.%Al 合金凝固过程中纯溶质控制的二维自由枝晶的生长, 探究了过饱和度和各向异性强度 ϵ_6 分别与枝晶尖端参数的关系, 获得了 MST 理论的 σ^* , 并与 LGK 理论、LKT 理论得到的 σ^* 值做了详细的对比。

2) 由 LGK, LKT 和 MST 定义式得到的 σ^* 均在 $\Omega < 0.60$ 时, 三条曲线均趋于平缓, σ^* 可近似为常数, 此时枝晶的生长受到纯溶质扩散的控制; 在 $\Omega > 0.60$ 时, 由于动力学对枝晶生长的控制增强, 使得 σ^* 快速减小, 此时与其对应的形貌图也明显发生变化, 由雪花状转变为圆状。

3) 过饱和度较低时, 晶核生长为没有侧枝的六对称枝晶, 而过饱和度的增大会促进二次枝的生长, 当 Ω 增大到 0.75 时, 二次枝分叉, 并影响一次枝的生长, 最终破坏枝晶的雪花状结构, 使枝晶尖端的稳定性系数 σ^* 不再恒定而急剧减小; 当 Ω 增大到 0.85 时, 枝晶完全由雪花状转变为圆状。

参考文献

[1] Gurevich S, Amoorezaei M, Montiel D, Provatas N 2012 *Acta Mater.* **60** 3287
 [2] Shi C X, Li H D, Wang D Z, Li Y Y, Zuo T Y 2001 *Mater. Rev.* **15** 5 (in Chinese) [师昌绪, 李恒德, 王淀佐, 李依依, 左铁镞 2001 材料导报 **15** 5]

[3] Cao R C, Ke W, Xu Y B 2001 *Acta Metal. Sin.* **51** 2 (in Chinese) [曹荣昌, 柯伟, 徐永波 2001 金属学报 **51** 2]
 [4] Asta M, Beckermann C, Karma A, Kurz W, Napolitano R, Plapp M 2009 *Acta Mater.* **57** 941
 [5] Amoorezaei M, Gurevich S, Provatas N 2012 *Acta Mater.* **60** 657
 [6] Ivantsov G R, Nauk D A 1947 *SSSR* **58** 567
 [7] Kessler D A, Koplik J, Levine H 1988 *Adv. Phys.* **37** 255
 [8] Pomeau Y, Ben-Amar M 1992 *Solids far from Equilibrium* (Cambridge: Cambridge University Press) pp365-378
 [9] Lipton J, Glicksman M E, Kurz W 1984 *Mater. Sci. Eng.* **65** 57
 [10] Lipton J, Glicksman M E, Kurz W 1987 *Metall. Trans. A* **18** 341
 [11] Lipton J, Kurz W, Trivedi R 1987 *Acta Metall* **35** 957
 [12] Plapp M 2011 *Philos. Mag.* **91** 25
 [13] Yamanaka A, Aoki T, Ogawa S, Takaki T 2011 *J. Cryst. Growth* **318** 40
 [14] Du L F, Zhang R, Xing H, Zhang L M, Zhang Y, Liu L 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 106401 (in Chinese) [杜立飞, 张蓉, 邢辉, 张利民, 张洋, 刘琳 2013 物理学报 **62** 106401]
 [15] Boussinot G, Brener E A, Temkin D E 2010 *Acta Mater.* **58** 1750
 [16] Zhang X G, Zong Y P, Wu Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 088104 (in Chinese) [张宪刚, 宗亚平, 吴艳 2012 物理学报 **61** 088104]
 [17] Wang X D, Ouyang J, Su J, Zhou W 2013 *Chin. Phys. B* **22** 106103
 [18] Wang Z J, Wang J C, Yang G C 2010 *Chin. Phys. B* **19** 078101
 [19] Li J J, Wang J C, Yang G C 2008 *Chin. Phys. B* **17** 3516
 [20] Karma A, Rappel W J 1998 *Phys. Rev. E* **57** 4323
 [21] Echebarria B, Folch R, Karma A, Plapp M 2004 *Phys. Rev. E* **70** 061604

- [22] Bergeon N, Tournet D, Chen L, Debierre J M, Guérin R, Ramirez A, Billia B, Karma A, Trivedi R 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 226102
- [23] Amooezaei M, Gurevich S, Provatas N 2010 *Acta Mater.* **58** 6115
- [24] Li J J, Wang Z J, Wang Y Q, Wang J C 2012 *Acta Mater.* **60** 1478
- [25] Wang M, Jing T, Liu B 2009 *Script. Mater.* **61** 777
- [26] Eiken J 2009 *Int. J. Cast. Met. Res.* **22** 1
- [27] Karma A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 115701
- [28] Kara M, Kurki-Suonio K 1981 *Acta Crystallogr. A: Cryst. Phys. Diffr. Theor. Gen. Crystallogr.* **37** 201
- [29] Sun D Y, Mendelev M I, Becker C A, Kudin K, Haxhimali T, Asta M, Hoyt J J, Karma A, Srolovitz D J 2006 *Phys. Rev. B* **73** 024116
- [30] Fu Z, Xu Q, Xiong S 2007 *Mater. Sci. Forum.* **546–549** 133
- [31] Ohno M 2012 *Phys. Rev. E* **86** 051603

Phase-field modeling of free dendritic growth of magnesium based alloy*

Duan Pei-Pei Xing Hui[†] Chen Zhi[‡] Hao Guan-Hua Wang Bi-Han Jin Ke-Xin

(Shaanxi Key Laboratory of Condensed Matter Structures and Properties, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710129, China)

(Received 9 September 2014; revised manuscript received 15 October 2014)

Abstract

In this paper, the process of the free dendritic growth of Mg-0.5 wt.%Al alloy in the basal plane (0001) is simulated in two-dimensional system by using a quantitative phase-field model. A convergence study is carried out to choose the optimal coupling parameter λ and grid width $\Delta x/W_0$ in simulation. Then we systematically discuss the effects of the anisotropic strength ε and the supersaturation Ω on dendrital tip growth velocity, radius, Péclet number, and stability parameter σ^* . Results show that the stability parameter σ^* defined by the theory of microscopic solvability is a function of the anisotropy strength ε , i.e., $\sigma^* \propto \varepsilon^{1.81905}$, which is obviously closest to $\sigma^*(\varepsilon) \propto \varepsilon^{1.75}$ obtained from the analytical solution. Moreover, for $\Omega < 0.6$, the stability parameter σ^* is approximately a constant while it sharply and monotonically decreases with the augment of the value of ε for $\Omega > 0.6$. This indicates that there is a transition from solute-controlled dendrite to kinetic dendrite as Ω increases. Furthermore, the transition of the growth pattern from the snow-like to the circle-like patterns occurs as Ω increases.

Keywords: phase-field simulations, magnesium alloys, free dendritic growth

PACS: 02.60.Cb, 81.10.Aj, 81.30.Bx, 81.30.Fb

DOI: 10.7498/aps.64.060201

* Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. 3102014KYJD026), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61078057, 51172183, 6147130, 11102164), the Natural Science Foundation of Shaanxi Province in China (Grant No. 2012JQ8013), NPU Foundation for Fundamental Research, China (Grant Nos. NPU-FFR-JC20110273, JC201155, JC20120246), and the Program of New Staff and Research Area Project of NPU, China (Grant No. 13GH014602).

[†] Corresponding author. E-mail: huixing@nwpu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: c2002z@nwpu.edu.cn