

Ti-44at% Al 合金小尺寸铸件柱状晶/等轴晶 演化过程模拟*

王狂飞^{1)†} 李邦盛¹⁾ 任明星¹⁾ 米国发²⁾ 郭景杰¹⁾ 傅恒志¹⁾

1) 哈尔滨工业大学材料科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

2) 河南理工大学材料科学与工程学院, 焦作 454100)

(2006 年 8 月 9 日收到, 2006 年 11 月 3 日收到修改稿)

利用溶质扩散控制模型对 TiAl 合金柱状晶/等轴晶转变过程进行了数值模拟, 结果表明, 等轴晶在柱状晶前沿形核及生长过程中, 当两个扩散场相遇时, 观察到成分冲击波, 它可能是导致柱状晶停止生长的一个主要原因. 利用该模型, 对小铸件柱状晶/等轴晶转变过程进行了预测, 在模拟过程中发现柱状晶界面前沿液相温度梯度, 成分过冷度可联合对柱状晶/等轴晶转变产生影响, 模拟与实验观察符合较好.

关键词: TiAl 合金, 成分冲击波, 柱状晶/等轴晶转变

PACC: 6100, 6610C, 6150J

1. 引言

近几十年来, 由于预测柱状晶/等轴晶转变 (CET) 对铸件的机械性能正确评估和设计具有重要意义而引起研究者的广泛关注^[1, 2]. 通常, 柱状晶生长时, 热流从过冷熔体单向流入凝固组织, 因局域生长条件不同, 固-液界面形貌可能为平面, 或胞状晶或枝晶; 等轴晶生长时, 热流仅从凝固组织多方向流入过冷熔体, 固-液界面形貌仅为枝晶. 在固-液界面以柱状晶生长时, 如果在界面前沿有等轴晶的形核及生长, 则发生 CET. 对于 CET, Hunt 最早建立了解析模型^[3], 他认为定向凝固发生 CET 与等轴晶温度梯度、凝固速率、形核过冷度、形核密度有关, Gäumann 等^[4]对此模型进行了修改, 考虑了非平衡效应 (GTK 模型), 并将其用于快速凝固. 随后其他研究者也推出一些类似复杂模型^[5], 由于这些模型均建立在枝晶尖端生长模型^[6] (KGT) 基础上, 仅对温度场求解, 而没有考虑枝晶间溶质场相互作用对 CET 的影响.

Martorano 等^[7]在其模型中考虑溶质对 CET 的影响, 认为如果生长中的等轴晶所排出的溶质导致

柱状晶前沿成分过冷足够大, 则发生 CET, 但对于“溶质阻挡柱状晶”的机理并没有具体说明. Li^[8]及 Nastac^[9]等人采用元胞自动机耦合有限差分的方法 (CA-FD), 应用连续界面追踪技术, 对生长界面溶质交互作用下的枝晶形貌进行了模拟. 本文基于这一思路, 利用溶质扩散控制模型, 模拟了 CET 过程, 并对“溶质阻挡柱状晶”的机理进行了探讨, 最后与实验结果进行对比.

2. 模型的建立

本模型首先采用有限差分方法对铸件凝固时发生的热传导、溶质扩散等传输过程进行求解, 接着通过组织形成的微观物理机理在局部建立元胞形核与长大的规则, 将有限差分计算结果耦合到元胞的演化规则中进行微观组织的演化模拟.

2.1. 热和溶质的传输模型

组织模拟中首先计算模拟区域的温度场, 因而需解传热方程^[10]

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(\lambda \nabla T) + Q, \quad (1)$$

其中, ρ 为材料密度, c_p 为比热, λ 为导热率, Q 为热

* 国家自然科学基金(批准号 50434030)资助的课题.

† E-mail: wkf-12@hpu.edu.cn

源项, T 为温度, t 为时间. 在没有固相形成时, Q 值为 0, 其他情况为

$$Q = L_h \frac{\partial f_s}{\partial t}, \quad (2)$$

其中, L_h 为凝固潜热, f_s 为固相分数.

求解温度场时边界散热条件为

$$\lambda \frac{\partial T}{\partial t} = h(T_\infty - T_b), \quad (3)$$

其中, h 为对流传热系数, T_∞ 为环境温度, T_b 为铸件边缘温度.

欲与浓度场耦合, 还需解溶质守恒方程^[11]

$$\frac{\partial \bar{C}}{\partial t} = \nabla(D \nabla p), \quad (4)$$

其中, $\bar{C} = f_s C_s + (1 - f_s) C_l$, C_l 和 C_s 分别为溶质在液相和固相中的浓度, D 为当量溶质扩散系数, 下标为 l 时表示溶质在液相中扩散系数, 下标 s 时表示溶质在固相中扩散系数. 如果相邻元胞 i 与 $i+1$ 中其中有一个为固相, 则 $D = D_s$, 否则, $D = 0$. $\chi f_s^i D_s + (1 - f_s^i) D_l + f_s^{i+1} D_s + (1 - f_s^{i+1}) D_l$. p 为中间变量, 对于固相: $p = \frac{C_s}{k_0}$; 对于液相: $p = C_l$; 对于界面: $p = C_1^*$, 其中, k_0 为溶质分配系数, C_1^* 为界面前沿液相溶质浓度.

当液相凝固形成固相时, 会引起一定比例的溶质排除到固-液界面前沿, 以保持两相的化学势平衡:

$$C_s^* = k_0 C_1^*. \quad (5)$$

根据相图可以得到在该温度和界面曲率条件下的界面液相溶质浓度^[9]

$$C_1^* = C_0 + \left(\frac{T - T_{eq} + \Gamma \bar{k} f(\theta, \varphi)}{m_1} \right), \quad (6)$$

其中, m_1 为液相线斜率, T_{eq} 为平衡状态下的熔点, Γ 为 Gibbs-Thomson 系数, \bar{k} 为界面平均曲率, 见文献[12], C_0 为初始浓度, $f(\theta, \varphi)$ 为表示曲率的各向异性函数, 见文献[9].

2.2. 形核与生长模型

凝固过程的元胞自动机方法包括形核算法、生长算法. 对于形核算法, Rappaz^[13]等假定: 在一系列的可能形核位置上, 会发生近瞬时形核. 如果在一个元胞里, 没有形核位置, 无论其温度多低, 都不会发生形核. 反之, 如果有形核位置, 且温度降到液相线以下, 则会形核.

在任意过冷度下, 液体金属内形核数可由方程

(7) 给出^[14]:

$$n(\Delta T) = \int_0^{\Delta T} \frac{dn}{d(\Delta T)} d(\Delta T), \quad (7)$$

其中形核密度为

$$\frac{dn}{d(\Delta T)} = \frac{n_{\max}}{\sqrt{2\pi\Delta T_\sigma}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\Delta T - \overline{\Delta T}}{\Delta T_\sigma}\right)^2\right] \quad (8)$$

式中, ΔT 为形核过冷度, ΔT_σ 和 $\overline{\Delta T}$ 分别为标准偏差过冷度和最大过冷度, n_{\max} 为最大形核密度, 均由实验观察得到. 通常, 在铸件表面与铸件内部选取不同的值.

在界面迁移的过程中, 固-液界面两侧溶质守恒方程为

$$\begin{aligned} (C_1^* - C_s^*)v_x &= -D_l \frac{\partial C_l}{\partial x} \Big|_{\text{interface}} + D_s \frac{\partial C_s}{\partial x} \Big|_{\text{interface}}, \\ (C_1^* - C_s^*)v_y &= -D_l \frac{\partial C_l}{\partial y} \Big|_{\text{interface}} + D_s \frac{\partial C_s}{\partial y} \Big|_{\text{interface}}, \end{aligned} \quad (9)$$

其中, v_x , v_y 分别为界面沿 x , y 方向的速度, C_s^* 为界面前沿固相溶质浓度.

由(9)式可算出界面迁移速度. 由于顺流及逆流对生长速度也产生影响, 因此可将其影响加以考虑:

$$\begin{aligned} v_y^* &= v_y [1 + k_a(\epsilon - \cos\alpha)], \\ v_x^* &= v_x [1 + k_a(\epsilon - \cos\alpha)], \end{aligned} \quad (10)$$

其中, v_y^* , v_x^* 为受流体流动方向影响的界面沿 x , y 方向的速度, k_a 为最大流速强度因子, $k_a = 0.5$, ϵ 为不对称因子, $\epsilon = 0.2$, α 为生长方向与流速之夹角, 顺流时取 180° , 逆流时取 0° .

3. 实验结果与讨论

图 1 为模拟用的小尺寸铸件, 铸件断面直径为 3 mm, 材料选用 Ti-44at%Al 二元合金, 熔模浇注, 造型材料为铝砂. 为了研究方便, 对铸件分段模拟, 模拟位置为沿铸件轴线的水平剖切面, 模拟区段如图 1 所示, 从铸件末端开始, 沿铸件渐开线方向每隔 30 mm 设置一个模拟区域, 并分别命名为 B, B1, B2, B3, B4 区域. 模拟区间尺寸为 6 mm × 3 mm(图 2), 其中上、下边为散热边界, 界面换热系数为 200 W/m²·K; 左、右边为绝热边界条件, 型壳预热温度为 65℃. Ti-Al 二元合金的物性参数见表 1. 铸锭模壁和内部液相选

用的形核参数见表 2.

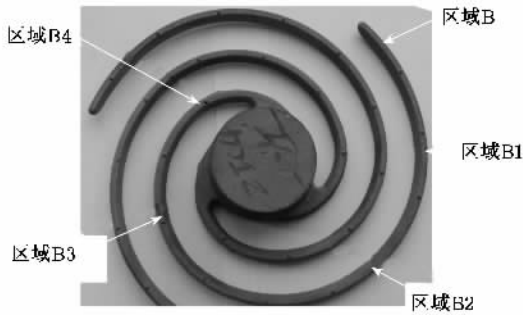


图 1 小型铸件示意图

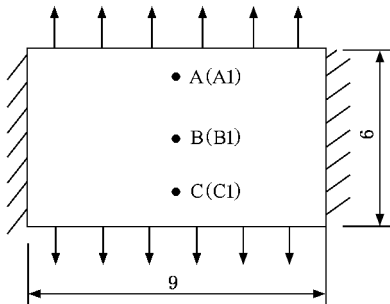


图 2 CET 模拟区域

表 1 Ti-Al 合金的物性参数^[15]

物性参数	取值
液相线温度 T_{eq}/K	1830
液相线斜率 $m_1/(K/at\%)$	-8.1
溶质分配系数 κ_0	0.717
液相溶质扩散系数 $D_1/10^{-9} m^2 \cdot s^{-1}$	3.0
固相溶质扩散系数 $D_s/10^{-12} m^2 \cdot s^{-1}$	3.0
Gibbs-Thomson 系数 $\Gamma/10^{-7} K \cdot m$	1.5
初始浓度 $C_0/at\%$	44
固相比热容 $c_{ps}/J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$	887.1
液相比热容 $c_{pl}/J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$	800
固相导热率 $\lambda_s/W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	30
液相导热率 $\lambda_l/W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	27
密度 $\rho/kg \cdot m^{-3}$	3800
凝固潜热 $L_h/10^6 J \cdot m^{-3}$	1580

表 2 铸锭壁和内部液相中的形核参数^[15]

表面形核参数			熔体内部形核参数		
$\Delta \bar{T}/K$	$\Delta T_g/K$	n_{max}/m^{-2}	$\Delta \bar{T}/K$	$\Delta T_g/K$	n_{max}/m^{-2}
2.0	0.5	2.0×10^{10}	5	1.5	1.2×10^9

CET 模拟过程为: 先由 ViewCAST 软件进行铸件温度场模拟, 然后将铸件充型结束时温度场作为初始条件进行 CET 模拟.

3.1. 溶质阻挡柱状晶模型

对大尺寸铸件, 由于散热量很大, 柱状晶生长受制于柱状晶前沿等温线推移. 等轴晶在柱状晶前面形核、生长过程中, 因释放结晶潜热, 改变液相中的温度场, 从而对 CET 位置产生影响; 而对小尺寸合金铸件, 由于近似均匀温度场, 柱状晶前沿等轴晶的形核与生长主要由界面区域溶质扩散所决定. 现以模拟区域为 80×180 长方形网格, 网格尺寸 $5 \mu m$, 边界条件为底边散热, 换热系数为 $200 W/m^2 \cdot K$, 预热温度为 $65^\circ C$, 其他边绝热为例, 对溶质阻挡柱状晶模型进行模拟.

图 3 为柱状晶前沿存在一个等轴晶粒时, 溶质扩散场对 CET 位置的影响. 由图可见, 凝固过程中, 首先在底端生成细小胞晶, 然后, 胞晶通过其间淘汰或竞争, 出现了胞晶 \rightarrow 树枝晶的转变(图 3(a), (b)). 当柱状晶前沿液相温度下降到等轴晶形核所要求的过冷度时, 等轴晶形核, 在其形核及生长过程中从固相排出溶质, 部分溶质扩散方向与柱状晶生长方向相反, 结果出现了两个溶质场的重叠(图 3(c)). 如果等轴晶数量很少或者长大速度很慢, 排出溶质量少, 对柱状晶前沿溶质场影响不大. 但是如果等轴晶形核数量很多, 或者等轴晶长大速度大, 则对柱状晶前沿液相溶质场产生影响. 由(9)式可知, 柱状晶前沿浓度梯度突然减小, 可导致柱状晶生长减缓甚至暂时停止生长. 柱状晶生长速度减慢后, 相应地固/液界面排出溶质量减小, 其柱状晶前沿液相浓度梯度出现了明显变化(图 3(d)-(e)). 另外, 对照成分标尺可知, 柱状晶间液相成分降低, 作者称为“成分冲击波”, 而随着柱状晶生长速度恢复, 固/液界面前沿液相成分增加(图 3(f)). 模拟中, 由于等轴晶在柱状晶的溶质扩散场范围内或附近形核, 仅阻挡一部分柱状晶生长.

等轴晶在柱状晶前方溶质扩散长度范围外较远处形核时, 由于两个溶质场相距较远, 等轴晶有足够的时间生长(图 4(a)), 因此, 两个溶质场相遇时, 由于成分积聚增多, 所造成的“成分波”冲击作用更大, 使得柱状晶生长速度减慢或暂时停止生长, 因而, 柱状晶恢复生长需要更长时间, 以至于等轴晶横向生长更长, 因而, 在与图 3 其他条件相同情况下, 对柱

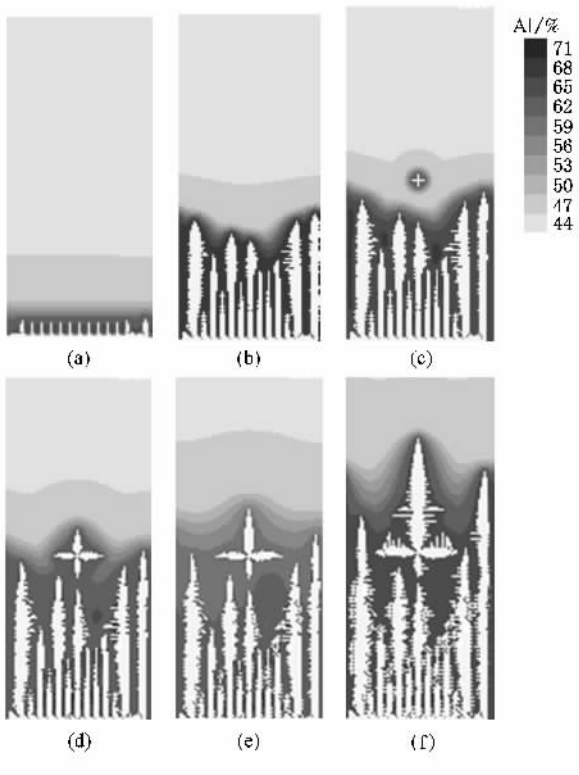


图3 等轴晶在柱状晶溶质扩散长度范围外形核 (a)0.5 s ; (b)1.3 s (c)1.6 s (d)1.8 s (e)2.1 s (f)2.5 s

状晶阻挡范围更大(图 4(c)). 以上模拟结果说明, 柱状晶停止生长与等轴晶排出溶质关系极大, 这与文献 7 观点基本一致, 他们认为, 等轴晶在柱状晶

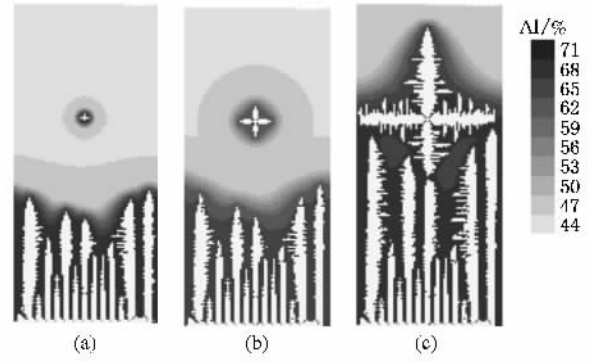


图4 等轴晶在柱状晶溶质扩散长度范围外形核 (a)1.3 s ; (b)1.6 s (c)2.5 s

前沿排出足够溶质, 导致过冷度增加时, 柱状晶将停止生长. 这说明成分扩散控制模型可用于铸件 CET 过程模拟.

3.2. CET 转变模拟及实验验证

图(5)为 B3 区域模拟组织及其浓度场. 由图可看出, 在上、下两侧来不及形成等轴晶区前, 由于择优取向的晶粒容易长大, 其他取向晶粒生长受阻, 柱状晶开始生成(图 5(a)). 由于温度梯度及加到生长速度中干扰因子的作用, 区域两边的柱状晶并非均匀分布.

由于 B3 区域两边柱状晶非均匀生长, 其前沿溶质扩散场区间不同、成分各异, 等轴晶呈团簇现

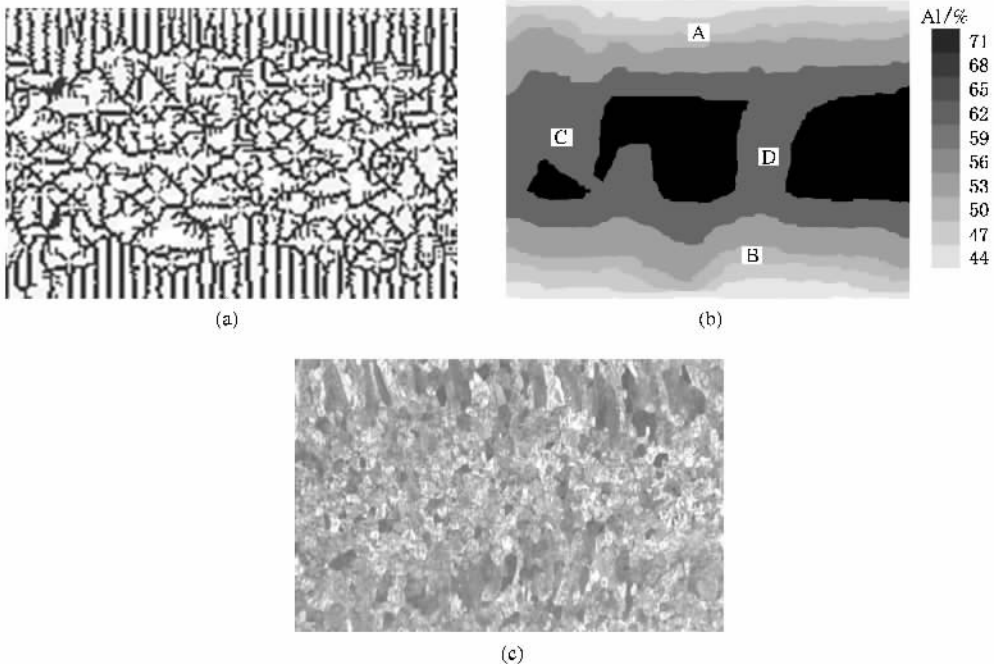


图5 B3 区域模拟组织 (a) 浓度场 (b) 及实验结果 (c)

象^[16].图 5(b)为凝固结束时固相溶质成分分布图,由图可见,在区域两边 A、B 等区域溶质成分分布呈阶梯状,说明凝固为非稳态过程,固相成分随凝固进行而不断增加.在区域中心由于等轴晶团簇现象,成分并非均匀分布,一些区域成分较高(C、D 等处),一些区域成分较低.说明等轴晶易于在柱状晶前沿溶质富集较小的区域形核及长大.图 5(c)为实验室获得的凝固组织,可见模拟结果与实际铸件组织吻合较好.

图 6 为 B—B2 及 B4 区域模拟组织.由图 6(a)可看出,因接近铸件末端,浇注过程中已损失一部分热量,熔体过热度低.在快速冷却条件下,一旦熔体内部温度下降到形核所要求过冷度,即刻有大量晶

核生成,CET 较早,等轴晶较细,其实验结果如图 7(a)所示.在图 6(b)中,由于熔体热量损失较少,过热度较高,在柱状晶快速生长前,多余热量无法快速释放,温度梯度大,不利于等轴晶形核,CET 推迟,与图 7(b)比较,柱状晶几乎有穿晶的趋势.随着熔体预热温度升高,温度梯度降低,CET 提前(图 6(c),(d)).特别是在图 6(d)中,由于靠近直浇道,因过热度大,柱状晶长大速度近乎与等轴晶粗化速度相同.图 7(c)(d)为实验结果,可见模拟与实验结果符合较好,只不过在实验中观察到,柱状晶向逆流一侧倾斜,因此本模拟中,在生长速度计算中加入液流的影响因子,其算法仍需进一步完善.

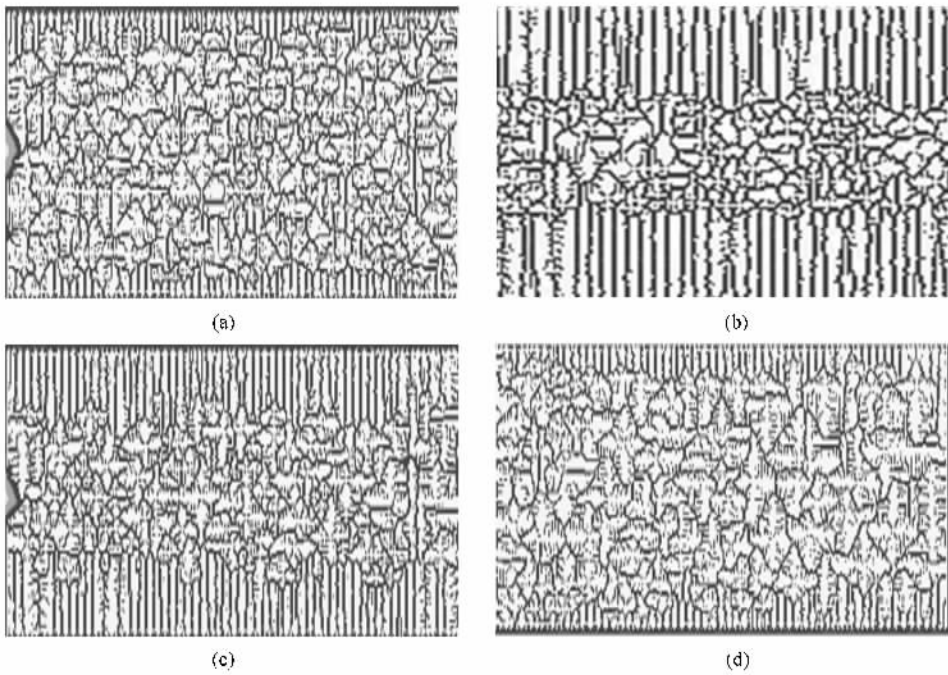


图 6 不同区段的模拟组织 (a)区域 B (b)区域 B1 (c)区域 B2 (d)区域 B4

由以上模拟及实验结果可看出,由于铸件各部分熔体流过时对铸型预热温度不同,熔体本身过热度不同,对 CET 产生影响.图 8 为无量纲的柱状晶长度(柱状晶长度之和/铸件边长)随铸件位置的变化关系.除铸件末端外,无量纲的柱状晶长度随距铸件末端弧线距离的增大而不断减小.根据 Hunt 的 CET 模型^[3],铸件生长存在三种状态:完全柱状晶、部分柱状晶、完全等轴晶.对于完全等轴晶($f_D > 0.49$),存在

$$G_L < 0.6N_0^{1/3}\Delta T_c \left(1 - \frac{\Delta T_n^3}{\Delta T_c^3}\right). \quad (11)$$

对于完全柱状晶($f_D < 0.006$),存在

$$G_L > 2.9N_0^{1/3}\Delta T_c \left(1 - \frac{\Delta T_n^3}{\Delta T_c^3}\right), \quad (12)$$

其中 ΔT_c 为枝晶尖端成分过冷度, N_0 为形核密度, ΔT_n 为形核过冷度, G_L 为界面前沿的温度梯度, f_D 为等轴晶固相分数.

由(11)(12)式,枝晶尖端成分过冷度小、温度梯度大有利于柱状晶生长,这与本模拟结果一致.特别值得注意的是:在铸件冷却速度较高区域(区域 B、区域 B1)因熔体过热温度不同,出现了截然相反的反转 CET 过程,这说明在快速生长条件下 CET 对界面前沿温度梯度(G_L)变化很敏感,温度梯度发生很小变化,均可能引起 CET 出现逆转.从本模拟也看出,

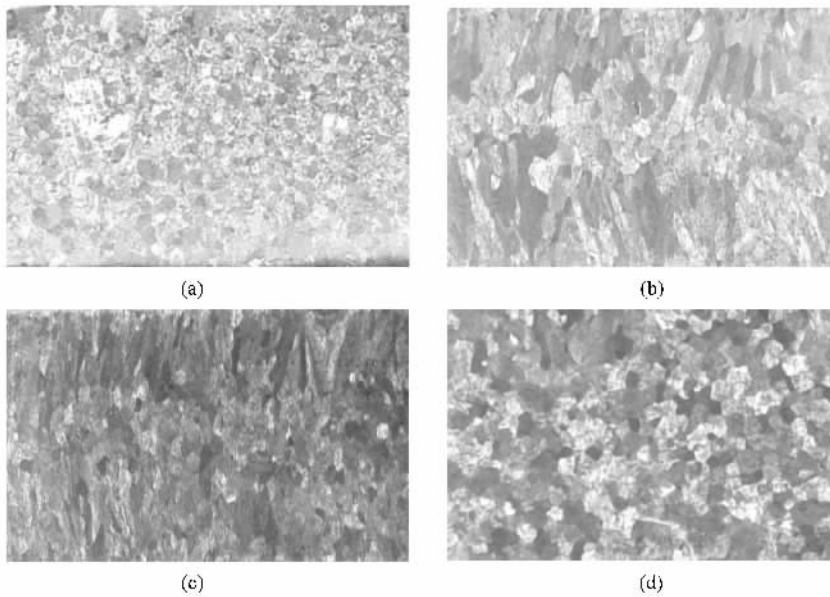


图 7 实验获得凝固组织 (a)区域 B (b)区域 B1 (c)区域 B2 (d)区域 B4

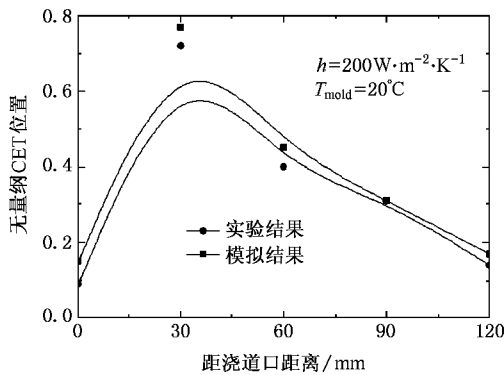


图 8 无量纲柱状晶长度随铸件位置的变化关系

即使在临界温度梯度下,如果界面前沿有少量等轴晶形核,则等轴晶形成的“成分冲击波”也可能破坏界面前沿溶质分布,促使 CET,这对于定向凝固柱状晶生长有一定启示,在抽拉速度恒定的柱状晶生长

过程中,经常出现柱状晶生长一段距离后即发生 CET.

4. 结 论

利用溶质扩散控制模型对 TiAl 合金小尺寸铸件 CET 过程进行了数值模拟,得出如下结论:

1) 对小尺寸铸件,由于近似均匀温度场,柱状晶前沿成分扩散决定着 CET,因而,在无对流情况下,成分扩散控制模型可用于小尺寸铸件 CET 模拟;

2) 由于等轴晶在柱状晶前沿形核及生长过程中,向柱状晶生长反方向排出溶质,两个溶质场相遇时产生“成分冲击波”,阻碍了柱状晶生长;

3) 温度梯度及成分过冷度对 CET 产生重要影响,柱状晶界面前沿液相温度梯度小,成分过冷度大,均易导致 CET. 模拟结果与实验观察相吻合.

[1] Pere M D, Siqueira C A, Garcia A 1986 *J. All. Com.* **381** 168
 [2] Li M E, Yang G C, Zhou Y H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 454 (in Chinese) [李梅娥、杨根仓、周尧和 2005 物理学报 **54** 454]
 [3] Hunt J D 1984 *Mater. Sci. Eng.* **65** 75
 [4] Gäumann M, Trivedi R, Kurz W 1997 *Mater. Sci. Eng. A* **226** 763
 [5] Wang C Y, Beckermann C 1996 *Metall. Mater. Trans. A* **27** 4217
 [6] Kurz W, Giovanola B, Trivedi R 1986 *Acta Mater.* **34** 823

[7] Martorano M A, Beckermann C 2003 *Metall. Mater. Trans. A* **34A** 1657
 [8] Li Q, Li D Z, Qian B N 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3477 (in Chinese) [李强、李殿中、钱百年 2004 物理学报 **53** 3477]
 [9] Nastac L 1999 *Acta. Mater.* **47** 4253
 [10] Long W Y, Cai Q Z, Wei B K, Chen L L 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1341 (in Chinese) [龙文元、蔡启舟、魏伯康、陈立亮 2006 物理学报 **55** 1341]

- [11] Li Q , Guo Q Y , Li D Z , Qian B N , Li D M , Li R o , Zhang P W 2004 *Chin . Phys . Lett .* **21** 143
- [12] Lazro B S , Stefanescu D M 2002 *Metal . Mater . Trans . A* **34A** 370
- [13] Gandin C A , Rappaz M 1994 *Acta Mater .* **42** 2233
- [14] Davies R H , Dinsdale A T , Chart T G , Barry T 1990 *High . Temp . Sci .* **26** 251
- [15] Liu D R , Guo J J , Wu S P , Su Y Q , Fu H Z 2006 *Mater . Sci . Eng . A* **415** 184
- [16] Reinhart G , Manginck-Noël N , Nguyen-Thi H , Schenk T , Gastaldi J , Billia B , Pino P , Härtwig J , Baruchel J 2005 *Mater . Sci . Eng . A* **413—414** 384

Numerical simulation of columnar to equiaxial transition during solidification of Ti-44at% Al alloy *

Wang Kuang-Fei^{1)†} Li Bang-Sheng¹⁾ Ren Ming-Xing¹⁾ Mi Guo-Fa²⁾ Guo Jing-Jie¹⁾ Fu Heng-Zhi¹⁾

1) *School of Materials Science and Engineering , Harbin Institute of Technology , Harbin 150001 , China*

2) *School of Materials Science and Engineering , Henan Polytechnic University , Jiaozuo 454100 , China*

(Received 9 August 2006 ; revised manuscript received 3 November 2006)

Abstract

Solute diffusion controlled solidification model was employed to simulate the columnar to equiaxial transition (CET) of TiAl alloy casting. The simulation results show that solute shock wave occurs when the diffusion fields of columnar and equiaxial dendrites meet. It could be one of the main factors blocking the columnar dendrite growth. Using this model , the CET in small castings was qualitatively predicted. It was found that the thermal gradient and solute undercooling ahead of the columnar tips of CET act jointly on CET , being in good agreement with experimental observations.

Keywords : TiAl alloys , solute shock wave , columnar to equiaxial transition

PACC : 6100 , 6610C , 6150J

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50434030).

† E-mail : wkf-12@hpu.edu.cn