

采用多相场法研究三维层片共晶生长的厚度效应*

杨玉娟 王锦程† 张玉祥 朱耀产 杨根仓

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2007 年 12 月 25 日收到, 2008 年 4 月 1 日收到修改稿)

采用 Kim, Kim, Suzuki 和 Ode 提出的 KKS0 多相场模型, 研究了固定层片间距不同层片厚度条件下三维过共晶层片生长形态的演化行为. 研究表明, 层片厚度对层片生长过程有较大影响. 当层片厚度较小时, 厚度效应较弱, 类似于二维生长. 随着层片厚度的增加, 厚度效应逐渐增强并开始产生厚度方向的振荡失稳, 造成层片取向的偏转. 层片厚度的进一步增加, 使层片宽度方向和层片厚度方向的振荡交替出现. 当层片厚度大于层片宽度时, 厚度效应逐渐强于宽度效应, 最终宽度方向的振荡被抑制, 仅在厚度方向形成类似于二维的 1λ 振荡. 模拟结果还表明, 不同层片厚度下液/固界面前沿平均过冷度变化与形态变化的趋势相符.

关键词: 数值模拟, 多相场, 三维层片生长, 层片厚度

PACC: 8140, 8110D, 8130F

1. 引 言

共晶合金历来都是材料科学、凝聚态物理学等学科令人感兴趣的研究对象, 目前有关共晶生长的研究报道非常多^[1-4]. 作为共晶生长的最基本形态之一的层片共晶, 对其研究主要基于经典的 Jackson-Hunter 模型, 即研究层片共晶生长过程中过冷度、生长速度和层片间距的关系^[5]. 以往关于共晶层片生长的实验及理论研究主要是针对准二维薄试样^[1, 4, 5], 但近年来一些三维体试样实验研究及数值模拟表明, 三维试样的微观组织形态与二维试样明显不同, 且在三维情况下层片间距的稳定性区间显著减小^[6, 7]. 近年来随着相场模型及数值计算方法的发展, 相场法已经成为凝固过程中微观组织模拟的一种重要方法^[8-10], 利用相场法对复杂三维微观组织演化进行模拟已经成为可能. 目前国际上已有一些研究团队分别采用各自不同的多相场模型对三维共晶生长行为进行了研究^[11-15]. 如 Lewis 等^[11, 12]首先通过多相场数值模拟的方法再现了棒状共晶的生长. Nestler 等^[13, 14]运用有限元法分别模拟了二元共晶和三元共晶系中复杂三维振荡生长. Plapp^[15]利用 Folch 多相场模型模拟了三维共晶层片生长形态稳

定性, 发现在整个成分范围内首先出现的不稳定性是“Z”字型分叉的不稳定性. 2004 年, Kim, Kim, Suzuki 和 Ode^[16]提出了 KKS0 多相场模型. 该模型与上述模型相比具有界面化学势相等且连续等优点, 然而迄今为止却未曾见到它被用于三维模拟. 此外, 最近孟广慧等^[17]通过实验研究发现, 在定向凝固 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 合金的体试样中, 试样厚度对共晶形貌的影响显著. 关于层片厚度对层片生长行为的影响却缺乏系统的数值模拟工作. 因此, 本文将采用 KKS0 多相场模型, 研究过共晶条件下三维层片共晶生长过程中的层片厚度效应.

2. 多相场模型

有关 KKS0 多相场模型的具体推导过程请参见文献^[16]. 下面首先给出本文中用到的条件和假设.

(1) 定义系统的体积自由能函数

$$F = \int_V [f^P + f^T + L(\sum_i \phi_i - 1)] dV, \quad (1)$$

式中 f^P 为双阱势能, f^T 为热力学势能, 且

$$f^P = \sum_{i \neq j} \left[-\frac{\epsilon_{ij}^2}{2} \nabla \phi_i \nabla \phi_j + \omega_{ij} \phi_i \phi_j \right], \quad (2)$$
$$f^T = \sum_{i=1}^3 \phi_i f^i(c_i),$$

* 国家自然科学基金(批准号 50271057)资助的课题.

† E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

L 为 Langrange 系数, L 可保证在体系任何位置的序参量守恒, 即

$$\sum_{k=1}^3 \phi_k(x, y, z, t) = 1.$$

(2) 假定界面上共存相化学势相等, 即

$$\begin{aligned} f_{c_1}^1[c_1(x, t)] &= f_{c_2}^2[c_2(x, t)] \\ &= f_{c_3}^3[c_3(x, t)] \\ &= f_c(x, t). \end{aligned} \quad (3)$$

(3) 视溶液的平均成分为计算中的溶质场变量,

$$c(x, t) = \phi_1 c_1 + \phi_2 c_2 + \phi_3 c_3. \quad (4)$$

(4) 分别用 α, β 和 γ 来表示共晶体系的三个相. α 为固相, $\phi_1 = 1$; β 为固相, $\phi_2 = 1$; γ 为液相, $\phi_3 = 1$.

根据以上条件和假设, 可推导出相场 ϕ_i 随时间的演化方程为

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -M_{ij} \frac{\delta F}{\delta \phi_i}, \quad (5)$$

式中

$$\frac{\delta F}{\delta \phi_i} = \sum_{j \neq i} \left[\frac{\epsilon_{ij}^2}{2} \nabla^2 \phi_j + \omega_{ij} \phi_j \right] + f^i(c_i) - c_i f_c.$$

同时还根据溶质守恒定律得溶质场方程为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla D \sum_i \phi_i \nabla c_i. \quad (6)$$

这里 M_{ij} 为相场动力学系数, ϵ_{ij} 为梯度项系数, ω_{ij} 为界面厚度参数, D 为扩散系数.

3. 计算条件

本文主要研究对象为溶质成分 $c_0 = 0.1387$ 的 $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ 过共晶合金. 对多相场模型控制方程 (5) (6) 的离散采用基于均匀网格的显式有限差分方式. 图 1 为定向凝固三维共晶层片生长及空间坐标示意图, 图中 w 为层片宽度, δ 为层片厚度, h 为层片高度, 它们分别平行于 x, y, z 坐标轴, 计算区域的网格数为 $I_{\max} \times J_{\max} \times K_{\max}$. 假定所有模拟在各向同性界面自由能下进行. 模拟中的参数取值如下: 定向凝固试样的抽拉速度 $v = 2 \mu\text{m/s}$, 体系温度梯度 $G = 0.8 \times 10^{-4} \text{ K/m}$, 空间步长 $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.2 \mu\text{m}$, 所用到的其他各物理参数的取值见文献 [4]. 在所有模拟中, 仅设置了两个层片作为初始条件, 因此层片宽度是层片间距的两倍. 为了达到更好的显示效果, 还对所有的形态演化图均作了两次叠加, 这意

味着实际上只模拟了每个图的四分之一部分.

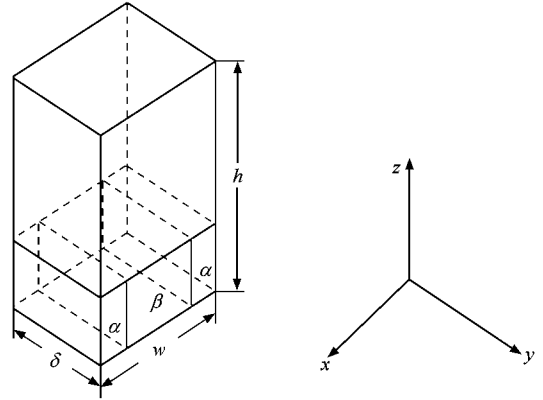


图 1 定向凝固三维共晶层片生长及空间坐标示意图

4. 结果及讨论

利用文献 [5] 所给出的层片共晶最小过冷度间距 λ_m 的计算公式, 经过推导可以得到

$$\lambda_m = \sqrt{\frac{2D_\gamma [(1-\eta)d_\alpha \sin\theta_\alpha + \eta d_\beta \sin\theta_\beta]}{vP(\eta)}},$$

式中各符号意义见文献 [5]. 本文计算中选取液相溶质扩散系数 $D_\gamma = 1.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$, β 相体积分数 $\eta = 0.5$, 抽拉速度 $v = 2 \mu\text{m/s}$, 其他参数采用文献 [4] 中给出的值, 由此可以求出 $\lambda_{\min} = 5.18 \mu\text{m}$. 本文设定初始层片间距 $\lambda_0 = 4.1 \mu\text{m}$, 故 $\lambda_0 < \lambda_{\min}$ 在形态演化初期都会发生层片湮没现象, 但经过湮没以后共晶层片仍是不稳定的, 在不同层片厚度下有可能出现各种形式的不稳定性.

本文对固定层片间距为 $4.1 \mu\text{m}$, 层片厚度在 $6.2\text{--}18.2 \mu\text{m}$ 之间变化的层片生长进行三维模拟, 通过在 z 方向作与 $x\text{-}y$ 平面平行的切片得到一系列的横截面来观察层片在第三维方向的形态变化. 图 2 给出了溶质场图和对应位置的切片图, 其中每组图的左侧为溶质场图, 右侧为切片图, 图中黑色区域表示 α 相, 白色区域表示 β 相, 灰色区域表示 γ 相, 不同的灰度代表成分的变化. 通过计算得到平均界面位置来确定界面前沿的平均过冷度.

如图 2(a) 所示, 当层片厚度为 $6.2 \mu\text{m}$ 时, x 方向产生类似于二维的 1λ 振荡, y 方向的振荡被抑制, 故层片生长过程与二维生长类似. 稍稍增大层片厚度, y 方向的失稳增强, 并逐渐占优势. 如图 2(b) 所示, 当层片厚度增加到 $7.0 \mu\text{m}$ 时, 开始时在 x 方向产生类似于二维的 1λ 振荡失稳, 经过一段时间

的过渡状态, x 方向的振荡变弱并伴随 y 方向振荡的增强, 最后 y 方向出现类似于二维的 1λ 振荡, 使层片取向发生偏转, 最终使共晶层片在横截面内垂直于初始层片方向. 通过模拟表明, 当层片厚度在 $6.6\text{--}8.2\ \mu\text{m}$ 之间取值时, 共晶层片都会发生偏转. 如图 2(c) 所示, 当层片厚度继续增加至 $8.2\ \mu\text{m}$ 时, x, y 两个方向的振荡失稳均会产生且强度相当, 故两个方向的振荡都有可能出现, 造成层片取向的竞争选择, 即在某一时段层片取向选择该时段振荡较强的方向, 而且该选择过程可认为是近似周期性的. 如图 2(d) 所示, 当层片厚度为 $10.2\ \mu\text{m}$ 时, 开始仅有 x 方向的振荡, y 方向处于临界状态, 随后 x 方向和

y 方向的振荡同时进行, 而且强度相当, 造成层片取向近似 45° 的偏转. 图 2(e) 所示为层片厚度为 $15.0\ \mu\text{m}$ 时, 演化初期 x 方向的 1λ 振荡占优势, 随后表现出 y 方向的 2λ 振荡, 经过一段时间以后两个方向的振荡均失稳, 很快在两个方向上又出现相同形式的混合振荡——倾斜 1λ 振荡. 此时两个方向的振荡强度并不完全相同, 造成层片取向偏向振荡较强的一方. 如图 2(f) 所示, 当层片厚度为 $18.2\ \mu\text{m}$ 时, 演化初期仅表现 x 方向的 1λ 振荡, 随后两个方向均失稳, 最终 x 方向振荡被抑制, 仅有 y 方向的 1λ 振荡, 层片取向偏转以后以恒定的取向进行稳态生长.

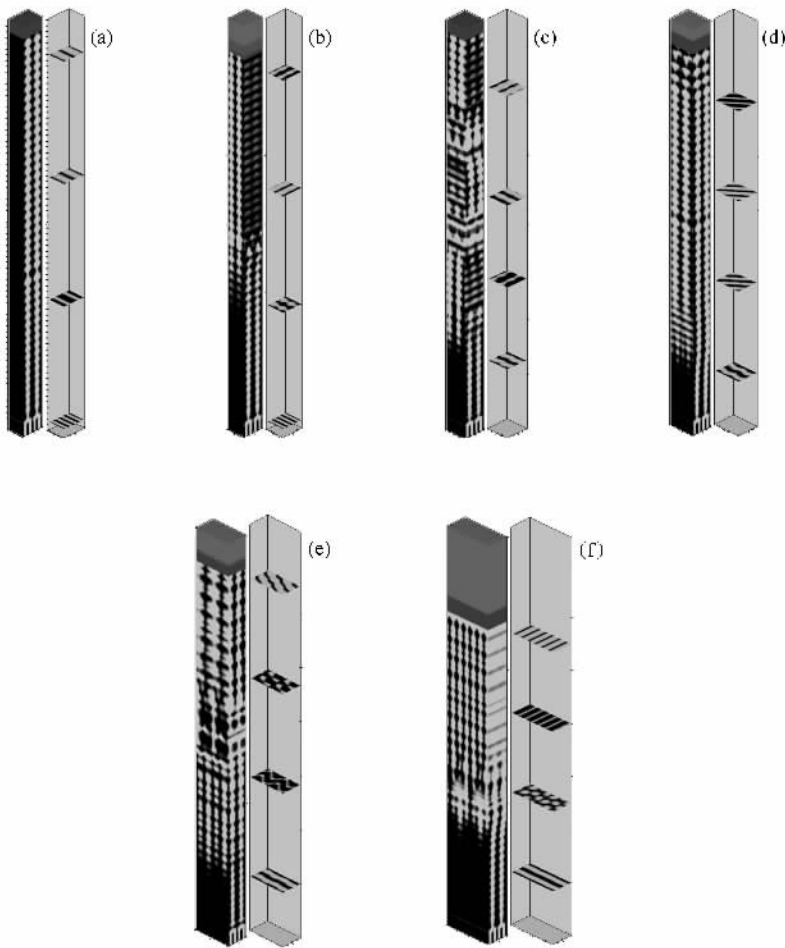


图2 不同层片厚度下三维共晶层片生长的形态演化($w = 8.2\ \mu\text{m}$, $h = 300.0\ \mu\text{m}$) 每组图的左侧为溶质场图, 右侧为切片图. (a) $\delta = 6.2\ \mu\text{m}$ (b) $\delta = 7.0\ \mu\text{m}$ (c) $\delta = 8.2\ \mu\text{m}$ (d) $\delta = 10.2\ \mu\text{m}$ (e) $\delta = 15.0\ \mu\text{m}$ (f) $\delta = 18.2\ \mu\text{m}$

从图 2 还可以看出, 在三维模拟中, 既有层片间距方向占优势的振荡, 又有层片厚度方向占优势的振荡. 这是因为在三维体试样中, 两个方向上都存在溶质扩散, 因此各种典型的振荡不稳定性将在两个

方向同时产生, 但两个方向的振荡在哪个方向占优势取决于两个方向尺度的相对大小. 根据 Karma 的判断准则^[18], 当失稳波长接近某个值时, 便选择该值相应的不稳定性, 因此三维层片形貌演化过程实

实际上就是在 x, y 两个方向上失稳波长的选择过程，在每一个方向上的失稳波长接近某个值，就选择一个该值相应的不稳定性。而各种不稳定产生的驱动力部分来自于非共晶成分的作用^[19]，因为本文设定的溶质成分为 $c_0 = 0.1387$ ，离共晶成分 $c_E = 0.118$ 较远。偏离共晶成分越远，产生不稳定性的驱动力越大。另外，由于本文没有考虑界面能各向异性的作

用，层片取向不受钉扎作用的影响^[20]。因此，在较大的驱动力作用下层片取向将比较活跃，甚至发生偏转。

图 3 给出了界面前沿平均过冷度随时间变化的关系曲线，以进一步揭示层片厚度效应。首先，图 3 中各曲线的最左端变化规律是非常类似的，这是由于在每个厚度下演化初期均会发生层片湮没现象，

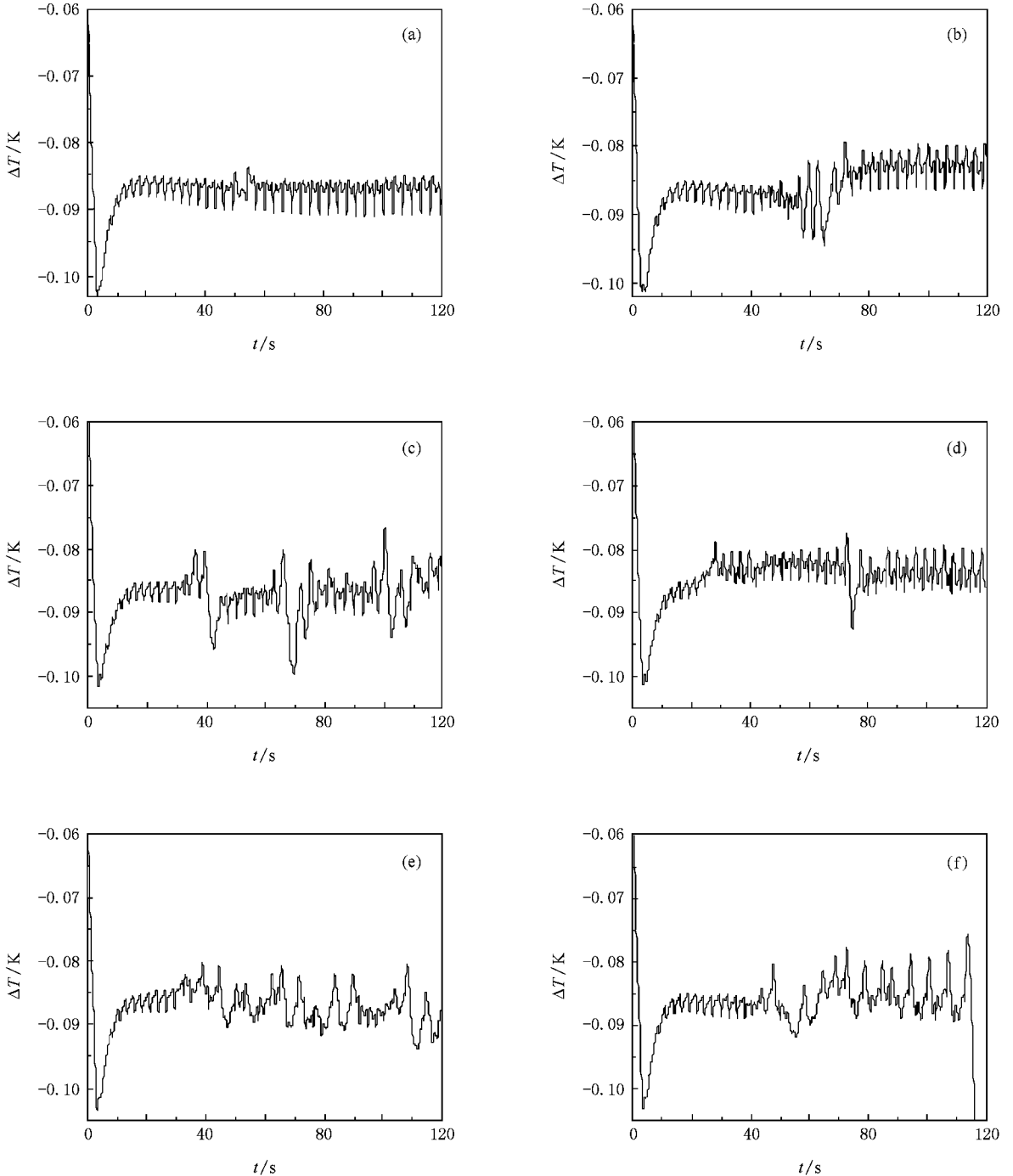


图 3 不同层片厚度下共晶层片生长界面前沿平均过冷度 ΔT 随时间 t 的变化 ($w = 8.2 \mu\text{m}, h = 300.0 \mu\text{m}$) (a) $\delta = 6.2 \mu\text{m}$ (b) $\delta = 7.0 \mu\text{m}$ (c) $\delta = 8.2 \mu\text{m}$ (d) $\delta = 10.2 \mu\text{m}$ (e) $\delta = 15.0 \mu\text{m}$ (f) $\delta = 18.2 \mu\text{m}$

经过湮没以后各曲线才发生相应的变化.从图 3(a)可以看出,当层片厚度为 $6.2 \mu\text{m}$ 时,过冷度曲线波动比较规则且波动幅度较小,而在生长形态上(如图 2)仅表现 x 方向的振荡.从图 3(b)可以看出,当层片厚度增加至 $7.0 \mu\text{m}$ 时,过冷度曲线有个较大的突变,并且在突变后曲线波形基本不变,但波动振幅明显增大.正是该过冷度的突变导致 x 方向占优势的振荡被 y 方向的振荡所代替,并造成共晶层片取向的偏转.因此,在突变后曲线波形不变,曲线波动振幅增大.从图 3(c)可以看出,当层片厚度与层片宽度相等时,过冷度曲线出现三次较大的突变,每一次突变以后波幅都有所改变.对应形态上是振荡占优势方向的三次改变,即两方向的振荡交替出现,因此层片取向也随之不断偏转.由此可以推测,过冷度曲线的每一次突变对应着一次层片取向的偏转.层片厚度大于层片宽度时,过冷度曲线波动的振幅明显增加(图 3(d)),表现在形态变化上是共晶层片同时在 x, y 两个方向发生振荡,过冷度曲线也有两种形式的波动,两种形式的波动振幅的叠加使整体波动的振幅增大.当进一步增大层片厚度时,过冷度曲线波形明显与前面不同,对应形态变化上是 x 方向和 y 方向的振荡失稳形式均与前面不同(图 3

(e)).从图 3(f)可以看出,当继续增加层片厚度时,过冷度曲线波形仍与前面不同,在此厚度下 x 方向的振荡逐步变弱,而 y 方向的振荡逐步增强并趋于规律,最终使 x 方向的振荡完全失稳,仅在 y 方向表现比较规律的 1λ 振荡.因此,不同层片厚度下过冷度的变化也是各不相同的,过冷度的变化与形态演化趋势是一一对应的,进一步说明了厚度的影响.

5. 结 论

本文利用多相场数值模拟方法对固定层片间距下不同层片厚度的三维层片过共晶生长形态演化行为进行了模拟.模拟结果表明,层片厚度效应对演化过程的影响非常明显.在层片厚度比较小时,层片厚度效应较弱,共晶层片在层片宽度方向的振荡生长占优势,类似于二维生长.当层片厚度与层片宽度接近时,层片厚度效应与宽度效应相当,厚度方向和宽度方向的振荡同时发生并交替进行.而在层片厚度较大时,层片厚度效应较强,最终使层片宽度方向的振荡被抑制,仅表现厚度方向的振荡.界面前沿平均过冷度的变化表明,生长过程中过冷度变化与形态转变趋势是相对应的.

- [1] Ginibre M ,Akamatsu S ,Faivre G 1997 *Phys. Rev.* **56** 780
- [2] Liu J M 1992 *Acta Phys. Sin.* **41** 861 (in Chinese) [刘俊明 1992 物理学报 **41** 861]
- [3] Walker H ,Liu S ,Lee J H ,Trivedi R 2007 *Metal. Mater. Trans. A* **38** 1417
- [4] Mergy J ,Faivre G ,Mellet R 1993 *J. Cryst. Growth* **134** 353
- [5] Jackson K A ,Hunt J D 1966 *Trans. Metal. Soc. AIM* **236** 1129
- [6] Akamatsu S ,Bottin-Rousseau S ,Faivre G 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** R175701
- [7] Apel M ,Boettger B ,Diepers H J ,Steinbach I 2002 *J. Cryst. Growth* **237** 154
- [8] Yu Y M ,Yang G C ,Zhao D W ,Li Y L 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2423 (in Chinese) [于艳梅、杨根仓、赵达文、吕衣礼 2001 物理学报 **50** 2423]
- [9] Zhu Y C ,Wang J C ,Yang G C ,Zhao D W 2007 *Chin. Phys.* **16** 805
- [10] Zhu Y C ,Wang J C ,Yang G C ,Yang Y J 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5542 (in Chinese) [朱耀产、王锦程、杨根仓、杨玉娟 2007 物理学报 **56** 5542]
- [11] Lewis D J ,Puszta T ,Granasy L ,Warren J A ,Boettinger W J 2004 *JOM* **56** 34
- [12] Lewis D J ,Boettinger W J ,Warren J A 2003 *Modeling of Casting , Welding and Advanced Solidification Processes* (Destin : TMS Publications) p5
- [13] Nestler B 2005 *J. Cryst. Growth* **275** 273
- [14] Danilov D ,Nestler B 2005 *J. Cryst. Growth* **275** 177
- [15] Plapp M 2007 *J. Cryst. Growth* **303** 49
- [16] Kim S G ,Kim W T ,Suzuki T ,Ode M 2003 *J. Cryst. Growth* **261** 135
- [17] Meng G H ,Lin X ,Du L C ,Huang W D 2007 *Acta Metal. Sin.* **43** 459 (in Chinese) [孟广慧、林鑫、杜立成、黄卫东 2007 金属学报 **43** 459]
- [18] Karma A 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 71
- [19] Hurler D T ,Jakeman E 1968 *J. Cryst. Growth* **3—4** 574
- [20] Caroli B ,Caroli C ,Faivre G ,Mergy J 1992 *J. Cryst. Growth* **118** 135

Investigation on the effect of lamellar thickness on three-dimensional lamellar eutectic growth by multi-phase field model^{*}

Yang Yu-Juan Wang Jin-Cheng[†] Zhang Yu-Xiang Zhu Yao-Chan Yang Gen-Cang

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

(Received 25 December 2007 ; revised manuscript received 1 April 2008)

Abstract

Using the multi-phase field model proposed by Kim, Kim, Suzuki and Ode (KKS0), numerical studies have been carried out to investigate the effect of lamellar thickness on the lamellar eutectic growth in three dimensions. Simulation results showed that the lamellar thickness has significant effects on the eutectic morphology evolution with a given lamellar spacing. When the lamellar thickness is comparatively small, the eutectic lamellar growth is similarly to the two-dimensional case. Increasing the lamellar thickness, the effect of lamellar thickness becomes stronger, as a result, the lamellar structure distorts vertically, and oscillations on both the direction of the width and the direction of the thickness occur alternatively after a further increase of the lamellar thickness. When the lamellar thickness is bigger than the lamellar width, a stronger oscillation in the thickness direction than that in the width direction occurs, and eventually the oscillation in the width direction is suppressed but only an approximate 1λ oscillation in the thickness direction can be found. Moreover, simulation results also showed that the change of undercooling is consistent with the morphology transition.

Keywords : numerical simulation, multi-phase field, three-dimensional lamellar growth, lamellar thickness

PACC : 8140, 8110D, 8130F

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50271057).

[†] E-mail : jchwang@nwpu.edu.cn