

# 切向流动作用下 SCN-3wt% H<sub>2</sub>O 枝晶定向生长过程研究<sup>\*</sup>

王建元<sup>†</sup> 陈长乐 翟 薇 金克新

(西北工业大学理学院, 西安 710072)

(2008 年 9 月 7 日收到 2008 年 10 月 22 日收到修改稿)

实时观察了切向流动作用下 SCN-3wt% H<sub>2</sub>O 合金的定向凝固过程, 研究了该合金枝晶生长方向、尖端半径、枝晶一次臂间距以及二次臂生长速度的变化规律. 实验观察到能够代表枝晶尖端溶质边界层的“亮带”, 该亮带在流动作用下的非对称性证实了切向流动能够改变枝晶前沿溶质的对称分布, 使溶质边界层厚度沿背流侧向迎流侧逐渐减薄. 枝晶生长发生迎流偏转, 且偏转角度随抽拉速度的提高而减小. 同时, 流场与浓度场的耦合促进枝晶间的优胜劣汰, 枝晶一次臂间距显著增大. 固液界面处的强迫流动还能够引发相邻枝晶间环流, 加速迎流处二次臂生长而抑制背流处生长.

关键词: 定向凝固, 枝晶生长, 切向流动

PACC: 8130, 8110, 6470D

## 1. 引言

枝晶是金属凝固过程中最常见的生长形态, 枝晶生长的各种微观特征直接关系到材料的物理和化学特性. 对流能够改变枝晶生长过程中的热量和质量传输, 从而影响最终的枝晶形态以及材料的性能. 近年来, 对流对凝固过程的重要影响作用使之成为材料物理领域的研究热点<sup>[1-10]</sup>. Ian 等人<sup>[6]</sup>发现, 强迫流动能够加速迎流处枝晶尖端生长并促使尖端分枝, 分枝的频率和幅度取决于流速. Medvedev 等<sup>[7]</sup>的研究表明, 强迫对流引发枝晶生长形态的转变和动力学相图的改变. Murakami 等<sup>[8]</sup>指出, 柱状晶生长倾斜角度随着流速的增大而显著增加. 虽然对流作用下的枝晶生长机理研究已取得初步进展, 但到目前为止, 并没有成熟地基于对流控制下的凝固理论. 众多研究者的研究结果也因实验条件的不同而存在分歧, 有些甚至与理论预测相互矛盾. 因此, 对流动作用下的枝晶生长进行系统地实验研究, 有着极为重要的科学和应用价值.

利用透明类金属有机物模拟金属, 可以实现对凝固过程的实时观测<sup>[11]</sup>. 本文以 SCN-3wt% H<sub>2</sub>O 透

明合金为研究对象, 通过在固液界面处施加切向对流作用, 实时观察了强迫流动作用下, 该合金枝晶尖端、一次枝晶臂以及二次枝晶臂的生长特征, 并据此对强迫对流作用下的枝晶生长机理进行理论解释.

## 2. 实验方法

实验在自行设计的系统内进行, 如图 1(a)所示. 该系统由定向凝固装置、液相流动发生装置及观测记录装置三部分组成. SCN-3wt% H<sub>2</sub>O 合金样品由纯 SCN(99.99%) 和高纯蒸馏水制成, 置于定向凝固装置的样品室内. 样品室为透明的光学玻璃盒, 其内部尺寸为 80.0 mm × 24.0 mm × 0.5 mm. 由于样品垂直方向上的厚度很小, 所以样品近似为二维生长. 样品的抽拉速度由变频电机通过减速机构来控制, 速度范围是 0—150 μm/s. 样品室的热端温度由 MC300 型 PID 温度控制仪控制(精度为 ± 0.01 K), 而冷端温度则利用冰水混合物使温度恒定在 273 K. 实验采取以下方法实现液相流动: 将厚度为 0.48 mm 的铁磁性叶片放置在热端液相中, 使其在外部旋转磁场驱动下发生转动引发液相的流动. 实验过程中, 叶片始终与旋转磁场保持同心旋转, 即通过旋转磁场固

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号 50331040, 50702046)和西北工业大学科技创新基金(批准号 2008KJ02031)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: wangjy@nwpu.edu.cn

定叶片,使其与固液界面的相对位置不发生变化,从而可以在固液界面处实现稳定的对流.整个实验过程由具有录像功能的 OLYMPUS-CKX41 型像衬显微镜进行实时观察与图像采集.在每一个选定的抽拉速度下,进行静态和强迫流动条件下对比实验.实验通过调节热端温度来调整界面处的宏观温度梯度,以确保静态和施加强迫流动时界面附近的温度梯度均恒定在  $G = 9.00 \text{ K/mm}$ .在强迫流动作用下,界面的中心区域为理想切向流动区域,其流速垂直于温度梯度  $G_L$  (如图 1(b)所示).实验过程中观察记录的均为界面中心区域的生长特征.

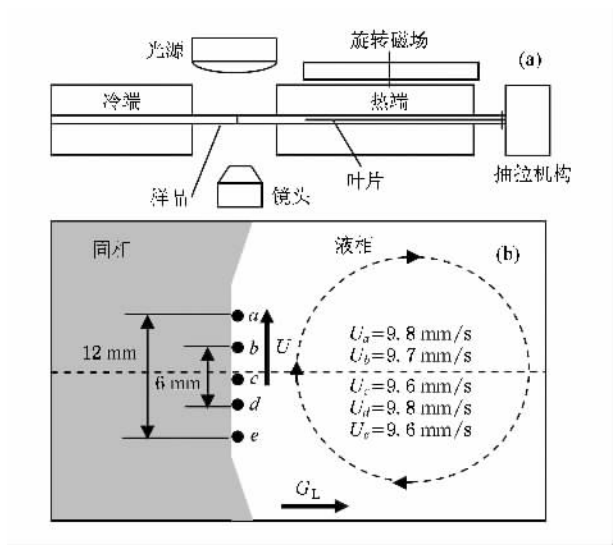


图 1 实验装置示意图 (a)实验系统结构示意图 (b)样品俯视图及流速测量

实验利用示踪粒子测定了距离界面  $200 \mu\text{m}$  处  $a, b, c, d$  和  $e$  点的液流速度,各点的速度差异小于  $0.2 \text{ mm/s}$ ,平均流速为  $U = 9.6 \text{ mm/s}$ ,可以认为界面前沿的流动是均一稳定的.流动的雷诺数  $Re = U \cdot x / \nu$ ,特征尺度  $x = 200 \mu\text{m}$ ,运动黏度  $\nu = 2.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ ,则  $Re = 0.77 \ll 2000$ ,液相流动形式为层流.

### 3. 实验结果与分析

枝晶生长形态示意图如图 2 所示,图中定义了枝晶的各微观尺寸.其中, $G_L$  为固液界面处液相中的温梯度,其方向为液固界面的法线方向; $G_r$  表示对流作用下枝晶主干的生长方向,由对流作用后枝晶生长端点与开始对流时枝端所在位置的连线所确定,生长偏转角  $\theta$  定义为  $G_r$  与无对流作用时枝晶对称中心线(近似于  $G_L$  方向)之间的夹角; $R$  是枝晶

尖端半径; $\lambda$  代表枝晶一次臂间距; $L$  为二次枝晶臂的长度.静态条件和流动作用下的枝晶阵列生长形貌如图 3 所示.以下从枝晶生长方向、尖端半径、一次臂间距、二次臂生长特征等几方面讨论了流动对直径生长得影响.各参量的数值统计采取每次实验对界面中央区域多个枝晶进行统计,并且进行多次实验取平均值的方法.

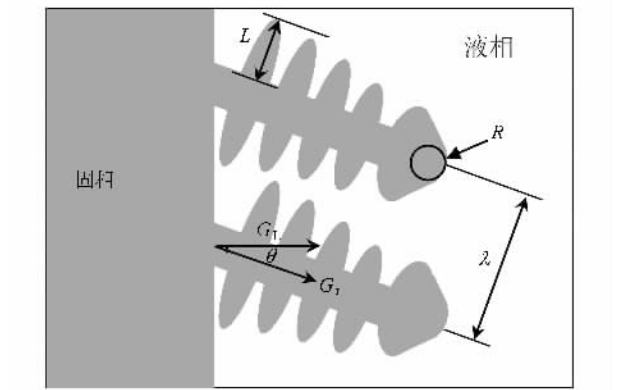


图 2 枝晶生长示意图

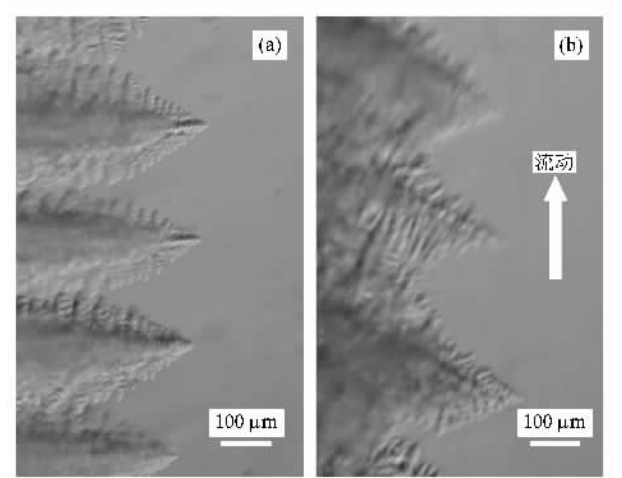


图 3 枝晶生长阵列形貌 ( $V = 33.6 \mu\text{m/s}$ ) (a)静态 (b)流动

#### 3.1. 切向流动作用下的枝晶生长方向和枝晶尖端半径

实验对有无流动作用下的枝晶尖端生长进行了研究.图 3 所示的是两种条件下枝晶尖端的微观生长形貌.不难发现,静态条件下,枝晶尖端沿界面法线方向呈对称的抛物线形状,如图 4(a)所示.在枝晶尖端前沿,有一明亮且厚度为  $\delta_0$  的均一宽带.液相中亮度的不均一性反映了溶质浓度的急剧变化,且亮带的宽度与溶质边界层的厚度相关.亮带越宽,边界层越厚.施加对流后,枝晶尖端亮带沿界面法线方向不再呈左右对称,如图 4(b)所示.除此以外,亮

带的厚度明显小于静态条件下,而且从迎流到背流方向,亮带厚度逐渐减小( $\delta_0 > \delta_1 > \delta_2 > \delta_3$ ).这证明了枝晶尖端溶质边界层厚度由背流向迎流方向逐渐

减小,溶质浓度梯度逐渐增大.变形的边界层导致尖端发生迎流偏转,枝晶生长不再沿着  $G_L$  方向,而是与之存在一定的夹角.

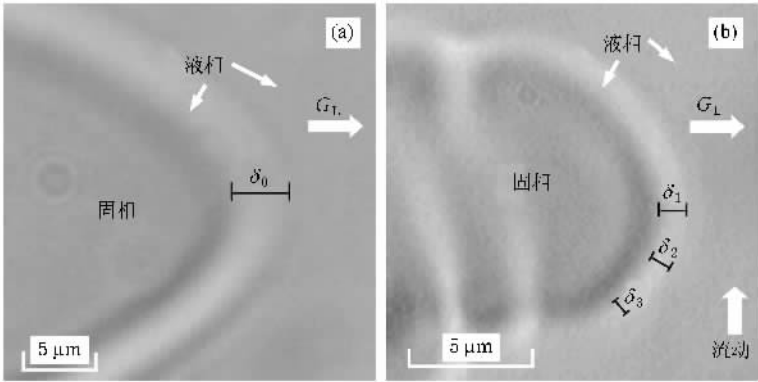


图 4 枝晶尖端微观生长形貌 ( $V = 58.3 \mu\text{m/s}$ ) (a) 静态条件下 (b) 切向流动作用下

实验对不同抽拉速度下的枝晶生长偏转角  $\theta$  作了统计,结果如图 5 所示.显然,偏转角  $\theta$  随着抽拉速度  $V$  的增加而单调减小. $V$  越大, $\theta$  越小.这一现象可以归因于不同方向上溶质的竞争传输.流动作用下,枝晶生长过程中存在着两个方向的溶质传输:一是沿界面法线方向的溶质传输,其速度与抽拉速度相关,另一个则是由液相流动引发的界面切线方向的溶质传输.这两个方向的溶质传输相互竞争,在一定的流速  $U$  下, $V$  越大,就意味着枝晶沿界面法向生长速度越快,枝晶就难以向切向偏转,偏转角随之减小.同时,统计了多次实验的界面的中间区域内的枝晶尖端半径平均值随抽拉速度  $V$  的变化规律,如图 6 所示.静态条件下,枝晶尖端半径  $R$  随  $V$  的增大而减小.流动作用下的尖端半径变化趋势与

静态作用下基本相同,只是相同的抽拉速度下,枝晶尖端半径明显减小.

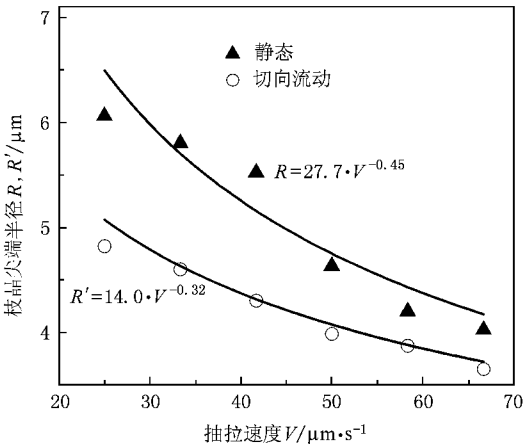


图 6 不同抽拉速度下的枝晶尖端半径

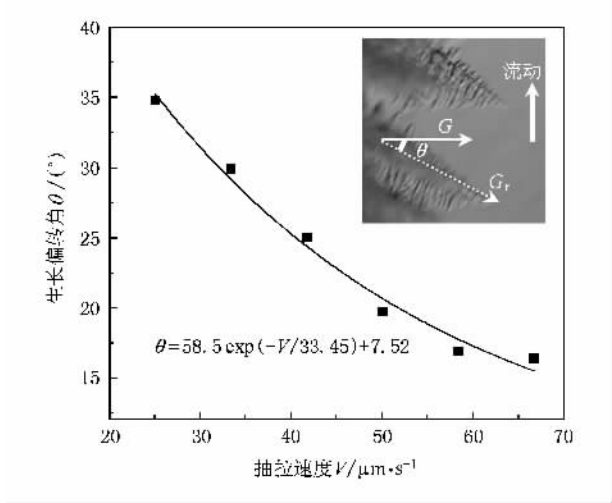


图 5 对流作用下生长偏转角与抽拉速度的关系

3.2. 对流作用下的枝晶一次臂间距调整机理

图 7 表示了两种条件下枝晶一次臂间距  $\lambda$  随  $V$  的变化关系.可以看出,静态条件下,枝晶一次臂间距均随着  $V$  的增大而减小,两者之间符合公式  $\lambda = 552.6 \cdot V^{-0.27}$ ,这与经典的凝固理论模型中  $\lambda \cdot V^{0.25} = \alpha(\sigma)$  是常数相符合<sup>[12-14]</sup>.流动作用下,一次臂间距仍然随  $V$  的增大而减小,满足指数关系  $\lambda' = 427.5 \cdot V^{-0.13}$ ,但对于同一抽拉速度,流动作用下的枝晶一次臂间距远大于静态条件下.

对枝晶生长过程的实时观测发现,无论有无强迫流动,在枝晶生长初期,由于随机扰动的存在,枝

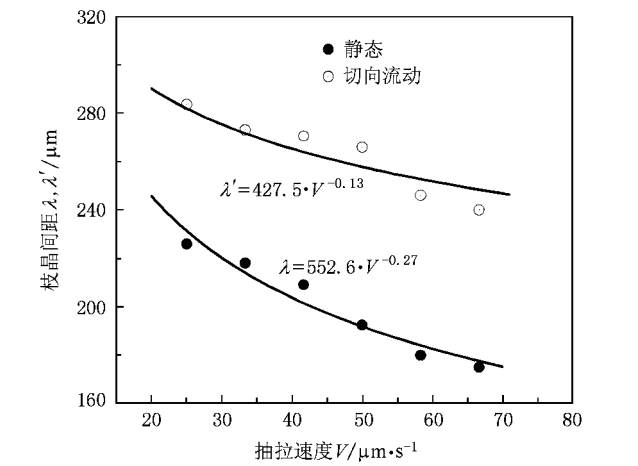


图7 枝晶一次间距随抽拉速度的变化规律

晶间会表现出长势的微弱差异.静态条件下,随着时间的推移,这种枝晶间的生长差异会逐渐减小,稳定的枝晶生长阵列和间距逐渐形成.相反,在强迫对流作用下,具有优先长势的枝晶生长速度进一步显著增加,而且迎流侧出现二次枝晶臂,而处于劣势生长的枝晶生长则更为缓慢.也就是说,强迫对流加剧了枝晶长势之间的差异.经过一段时间后,优势枝晶迎流侧二次臂突出生长,逐步掩盖了其相邻落后枝晶的主干,占据原本属于落后枝晶的生长空间,最终落后枝晶被优势枝晶所淘汰.相同空间内枝晶数目的减少必然导致枝晶一次臂间距的增大.

切向流动作用下的枝晶一次臂间距调整是流场与浓度场耦合作用的结果.优先生长的枝晶,其生长速度主要由液固界面上的溶质再分配决定.优先生长的枝晶,其前沿溶质边界层在流动作用下减薄,排出的溶质能随周围液相的运动很快地被带走,生长进一步加速,优先生长枝晶排出的溶质大量聚集在落后枝晶的周围,抑制了其向前生长.可见,流动的存在加剧了凝固界面前沿浓度场的变化,使原来长势区别不大的枝晶表现出明显的生长差别,为优势枝晶淘汰落后枝晶提供了驱动力,从而加速了枝晶间距的调整过程,使劣势枝晶迅速被淘汰,优势枝晶间距增大.

3.3. 切向流动作用下的二次枝晶臂生长特征

静态条件和切向流动作用下的二次枝晶臂生长形态如图8所示.可以看出,静态条件下,二次臂沿枝晶主干方向呈左右对称分布.流动作用下,迎流方向的二次枝晶臂生长发达,而背流处二次臂受到明显抑制,二次臂的对称性消失.进一步分析发现,静态条件下,二次臂的侧面包络为一曲线(图8(a)中曲线A),这说明在生长过程中,二次臂的生长速度不恒定,初生时较快,生长至一定长度速度减缓.强迫流动作用下,二次臂在迎流处侧向包络基本为一条直线(图8(b)中直线B),这证明迎流侧二次枝晶臂为匀速生长.

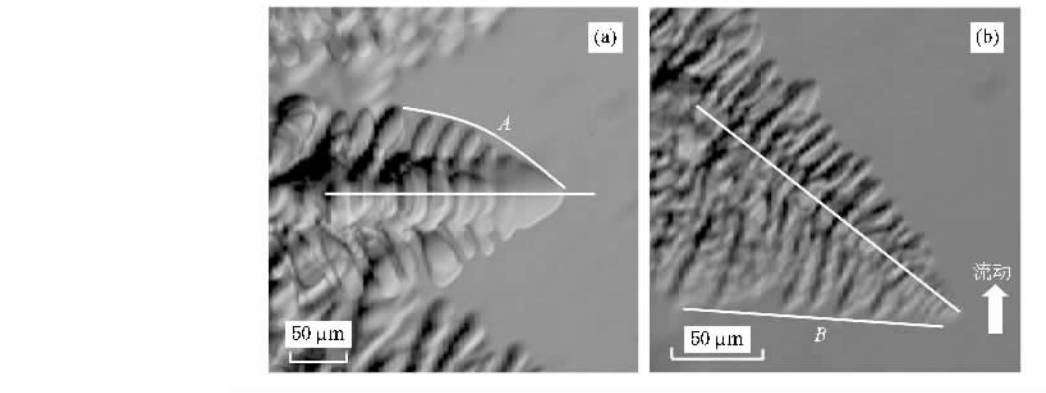


图8 二次臂生长形态 (a)静态 (b)流动作用下

图9所示的为不同条件下的二次臂平均生长速度  $V_{si}$  与抽拉速度  $V$  的关系.单个二次臂平均生长速度是计算了该二次臂由出现到生长到最长的这个过程的速度.取多次实验多个枝晶的平均值得到该实验条件下的枝晶二次臂平均生长速度.由图可

以看出,二次臂生长速度均随抽拉速度的变大而加快.但对于同一抽拉速度,迎流处二次臂生长速度最快.静态条件下次之,而背流处二次臂生长速度最慢.二次枝晶臂生长速度的差异源于液固界面处强迫流动所引起的相邻枝晶间的环流.图10为相邻两

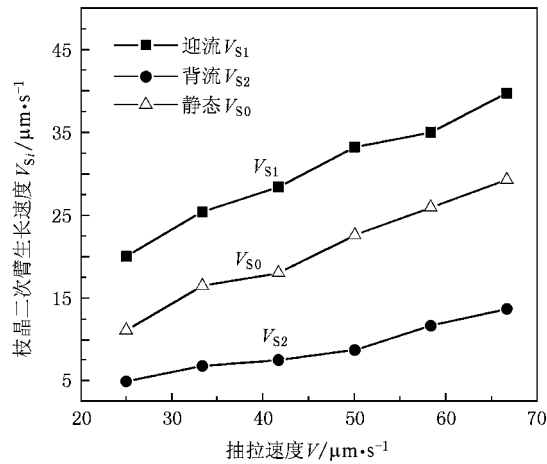


图 9 不同条件下的二次臂平均生长速度

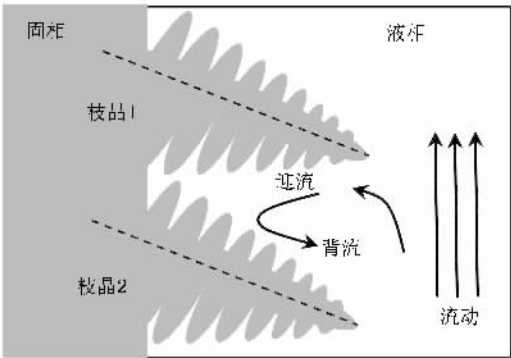


图 10 枝晶间环流示意图

枝晶间的环流示意图.图中,枝晶 1 迎流侧二次臂生长过程中排出的溶质原子随周围液相的运动被迅速带走,该处溶质富集程度降低,溶质浓度梯度变大,二次臂生长得以加速.另一方面,枝晶 1 迎流侧排出的溶质随液相的运动而聚集在枝晶 2 的背流处,严重制约了该处的二次臂生长.这说明流动作用不仅改变了枝晶尖端前沿的溶质分布,也打破了二次枝晶臂间溶质分布以主干呈对称分布的特征.值得指出的是,二次枝晶臂的匀速生长是枝晶间环流作用的直接体现.环流的作用使迎流侧的溶质分布在一定的抽拉速度下处于稳态,从而使二次臂的生长速度趋于恒定,这必定能够降低二次臂生长过程中的微观偏析.实验进一步考察了流动作用下迎流二次臂生长速度相对于静态作用下的变化率  $\eta$ , ( $\eta =$

$\frac{V_{s1} - V_{s0}}{V_{s0}} \times 100\%$ ),如图 11 所示.不难发现,在固定的流速下, $V$  越大,迎流处二次臂生长速度的相对变化率越小.这说明提高抽拉速度有利于减弱对流引起的枝晶间环流的影响.随着抽拉速度的提高,强迫流动对迎流处二次臂生长的加速作用越来越弱.

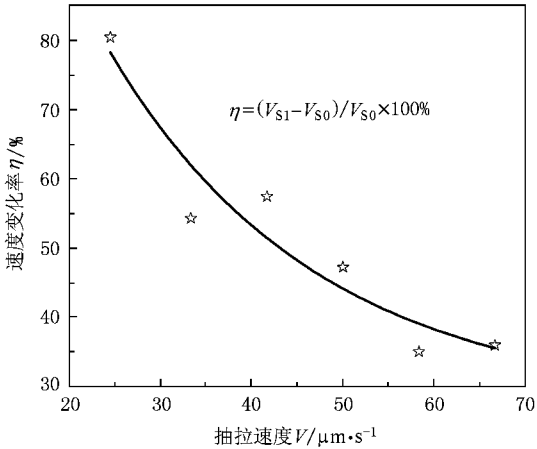


图 11 二次枝晶臂平均生长速度的相对变化率

4. 结 论

本文研究了切向流动作用下,SCN-3wt%  $\text{H}_2\text{O}$  合金枝晶的定向生长过程,主要得到了以下结论:

1. 首次观察到可以间接反映界面前沿溶质变化的“亮带”,证实流动作用能够改变前沿溶质分布的对称性,使前沿边界层厚度从背流侧到迎流侧逐渐减小,溶质浓度梯度逐渐增大.
2. 枝晶尖端在强迫对流作用下发生迎流偏转,偏转角度随抽拉速度的提高而减小.这是界面切向和法向溶质传输相互竞争的结果.同时,对于同一抽拉速度,流动作用下的枝晶尖端半径小于静态条件下.
3. 强迫对流引发枝晶一次臂间距增大,这归因于流场与浓度场耦合改变了凝固界面前沿的溶质分布,为优势枝晶淘汰落后枝晶提供了驱动力.
4. 固液界面处的强迫流动引发了相邻枝晶间环流,该环流加速迎流处二次枝晶臂的生长而抑制背流处生长.迎流处二次臂生长速度的提高程度随抽拉速度的增大而减小.

- [ 1 ] Jin W Q , Liang X A , Hong Y 2004 *Journal of Crystal Growth* **271** 302
- [ 2 ] Beckermann C , Diepers H J , Steinbach I , Karma A , Tong X 1999 *Journal of Computational Physics* **154** 468
- [ 3 ] Wang W L , Dai F P , Wei B B , 2007 *Science in China G* **50** 472
- [ 4 ] Zhai W , Hong Z Y , Wei B B 2007 *Science in China G* **50** 500
- [ 5 ] Brailovskaya V A , Zilberberg V V , Feoktistova L V 2000 *Journal of Crystal Growth* **210** 767
- [ 6 ] Lan C W , Shih C J 2004 *Journal of Crystal Growth* **264** 472
- [ 7 ] Medvedev D , Fischaleck T , Kassner K 2007 *Journal of Crystal Growth* **303** 69
- [ 8 ] Murakami K , Fujiyama T , Koike A , Okamoto T 1983 *Acta Metallurgica* **31** 1425
- [ 9 ] Spinelli J E , Rocha O F L , Garcia A 2006 *Material Research* **9** 51
- [ 10 ] Kim H J , Chandola A , Bhat R , Dutta P S 2006 *Journal of Crystal Growth* **289** 450
- [ 11 ] Zhai W , Wang N , Wei B B 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2353 ( in Chinese ) 翟 薇、王 楠、魏炳波 2007 物理学报 **56** 2353 ]
- [ 12 ] Hunt J D 1979 *Solidification and casting of metals* , the metal society , London , p3
- [ 13 ] Kurz W , Fisher D J 1981 *Acta Metal.* **29** 11
- [ 14 ] Trivedi R 1984 *Metall. Trans* **15A** 97

## Directional dendrite growth of SCN-3wt% H<sub>2</sub>O under shear flow<sup>\*</sup>

Wang Jian-Yuan<sup>†</sup> Chen Chang-Le Zhai Wei Jin Ke-Xin

( School of Science , Northwestern Polytechnical University , Xi 'an 710072 , China )

( Received 7 September 2008 ; revised manuscript received 22 October 2008 )

### Abstract

Directional solidification of SCN-3wt% H<sub>2</sub>O was carried out under externally imposed parallel shear flow , and the growth characteristics of dendritic tips , primary arms and secondary arms were investigated. A bright band related to solute boundary layer along the dendritic tip is observed for the first time. It was confirmed that the left-right symmetry of the dendritic tip is broken up by the shear flow , with the dendritic tip tilting toward the upstream side. The tilting angle increases with the pulling rate. Compared with the case of static condition , the primary spacing becomes larger under shear flow , and this is due to the coupling effect of flow and solute fields. The growth of secondary arm is promoted at the upstream side whereas greatly restrained at the downstream side , which is caused by the circumfluence among dendrites produced by force flow.

**Keywords** : directional solidification , dendrite growth , shear flow

**PACC** : 8130 , 8110 , 6470D

<sup>\*</sup> Project supported by the of National Natural Science Foundation of China( Grant Nos :50331040 ,50702046 ) , and Science-Technology Innovation Foundation of Northwestern Polytechnical University( Grant No.2008KJ02031 ).

<sup>†</sup> E-mail :wangjy@nwpu.edu.cn