

二元合金高速定向凝固过程的相场法数值模拟^{*}

李梅娥^{1)†} 杨根仓²⁾ 周尧和²⁾

¹⁾ 西安交通大学材料科学与工程学院, 西安 710049)

²⁾ 西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2003 年 12 月 17 日收到, 2004 年 4 月 7 日收到修改稿)

利用相场法对二元合金高速定向凝固过程进行了模拟, 为简化计算, 采用了温度冻结近似. 模拟了定向凝固时平界面失稳、界面形态演化、溶质浓度分布以及高速绝对稳定性条件下胞晶向平面晶的转变等, 得到了不同抽拉速度下胞晶间距、胞晶尖端温度以及有效溶质分配系数等参数, 显示了高速生长条件下的溶质截留效应.

关键词: 定向凝固, 相场法, 高速绝对稳定性, 溶质截留

PACC: 8130, 6480G, 7115Q, 8140

1. 引 言

合金定向凝固过程的界面形态学一直是人们关注的焦点之一. Mullins 和 Sekerka^[1]利用扰动分析方法提出了所谓线性稳定性理论(MS 理论)来预测定向生长时平界面失稳的扰动波长; Warren 和 Langer^[2]进一步考虑了达到稳态平界面生长之前的初始瞬变过程, 提出了一次枝晶间距的计算公式, 与实验结果符合较好. 除理论分析外, 人们还利用实验及数值计算方法作了大量工作, 来研究定向凝固的界面稳定性、胞晶间距调整以及界面动力学效应和各向异性的影响等. 而上述工作都是基于经典尖锐界面模型, 在尖锐界面模型中, 固液界面厚度为 0, 即固、液相在界面处是突变的. 在晶体生长过程中, 这一界面的形状和位置是不断变化的, 界面跟踪给数值计算带来极大困难.

近年来出现的相场模型是一种弥散界面模型, 该模型认为固、液相之间是渐变的, 即界面具有一定厚度. 通过引入一个新的变量——相场变量 ϕ 来描述不同的相, 将整个计算域作为一个整体, 避免了界面跟踪带来的困难, 已被广泛用于模拟相变过程中的组织演化问题^[3-6]. 本文利用相场法模拟二元合金定向凝固的界面形态演化过程, 对定向凝固的胞晶间距调整、胞晶向平面晶转变以及溶质截留等进

行研究.

2. 计算模型

2.1. 控制方程

对于由组元 A, B 组成的二元合金, 其相场控制方程为

$$\dot{\phi} = M_{\phi}[\nabla \cdot (\epsilon^2 \nabla \phi) - (1 - c)H_A - cH_B], \quad (1)$$

$$\dot{c} = \nabla \cdot D_c[\nabla c + \frac{v_m}{R}c(1 - c)(H_B - H_A)\nabla \phi] \quad (2)$$

式中 ϕ 为相场变量, c 为成分 B 的溶质浓度, H_A 及 H_B 定义如下:

$$H_A = P(\phi)L_A\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_A}\right) + W_{Ag}'(\phi), \quad (3)$$

$$H_B = P(\phi)L_B\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_B}\right) + W_{Bg}'(\phi), \quad (4)$$

其中 $P(\phi) = \phi^3(6\phi^2 - 15\phi + 10)$ 是 ϕ 的单调递增函数, 满足 $P(0) = 0, P(1) = 1$; $g(\phi) = \phi^2(1 - \phi^2)$ 为一双阱势函数, 且有 $P'(\phi) = 30g(\phi)$; $W_{A,B}$ 为待定常数; $L_{A,B}$ 及 $T_{A,B}$ 分别为纯物质 A 和 B 的潜热及熔点; $D_c = D_L P(\phi) + D_S(1 - P(\phi))$ 是与相场有关的溶质扩散系数, 其中 D_L, D_S 分别为液相及固相的扩散系数; M_{ϕ} 为与界面动力学有关的参数; 梯度项系数 ϵ 与界面自由能各向异性有关, 对四次对称型各向异

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 50395103, 50271057)资助的课题

[†] E-mail: limeie@mail.xjtu.edu.cn

性 $\varepsilon = \bar{\varepsilon}(1 + \gamma \cos 4\theta)$, θ 为固液界面法向与 x 轴夹角, γ 为各向异性指数, $\bar{\varepsilon}$ 为常数项.

通过求解固、液共存的一维相场方程以及界面自由能定义可建立相场参数 $W_{A,B}$, M_ϕ 及 ε 与材料热物性参数的关系^[4].

2.2. 温度冻结近似

为模拟合金定向凝固过程, 实际还应求解能量方程, 但为使问题简化, 本文采用了温度冻结近似 (frozen temperature approximation)^[7,8], 根据该近似假设 $T = T_0 + G(z - z_0)$, 即相对于沿定向生长方向以抽拉速度 V 移动的坐标系而言, 温度梯度 G 为常数. 其中 z_0 为参考平面, T_0 为其对应温度. 由于热扩散系数一般较溶质扩散系数高 4 个数量级, 因此, 在感兴趣的时间尺度内, 凝固潜热扩散很快, 可忽略不计; 另一方面, 液、固相导热系数相差不大, 可认为固相及液相内的温度梯度相同, 因此采用上述假设是合理的.

由于凝固界面是不断移动的, 为节省计算时间, 并使凝固界面始终处于计算域内, 采用移动盒算法: 若 $\Delta(Vdt) = n\Delta$ 为网格尺寸, dt 为时间步长, V

为温度场移动速度(抽拉速度), 则每经过 n 步, 相场及浓度场均沿定向生长方向前移一个网格, 即 $\phi_{i,j} = \phi_{i+1,j}$, $c_{i,j} = c_{i+1,j}$, 而新进入计算域的一排网格则采用远场边界条件, 即 $\phi = 1$, $c = c_\infty$. 计算域内温度分布保持不变.

3. 结果与讨论

考虑 Ni-Cu 合金系, 采用的材料物性参数如下 (A 为 Ni, B 为 Cu): $T_A = 1728\text{K}$, $T_B = 1358\text{K}$, $L_A = 2350\text{J/cm}^3$, $L_B = 1728\text{J/cm}^3$, $D_L = 10^{-5}\text{cm}^2/\text{s}$, $D_S = 10^{-9}\text{cm}^2/\text{s}$, $\sigma_A = 3.7 \times 10^{-5}\text{J/cm}^2$, $\sigma_B = 2.9 \times 10^{-5}\text{J/cm}^2$. 初始液相中溶质元素 Cu 的含量为 $c_\infty = 0.4083\text{at. \%}$, 平衡分配系数 $k_0 = 0.86$. 界面厚度 $\delta = 5 \times 10^{-6}\text{cm}$, 网格尺寸 $\Delta = 2.5 \times 10^{-6}\text{cm}$, 各向异性指数 $\gamma = 0.04$, 噪声强度 $\alpha = 0.3$.

计算域为 800×1000 网格, 温度梯度 $G = 2 \times 10^4\text{K/cm}$, 抽拉速度为 $0.25\text{—}3.0\text{cm/s}$. 计算域两侧面采用绝热边界条件(即热通量为 0), 底面和顶面边界条件设置见 2.2.

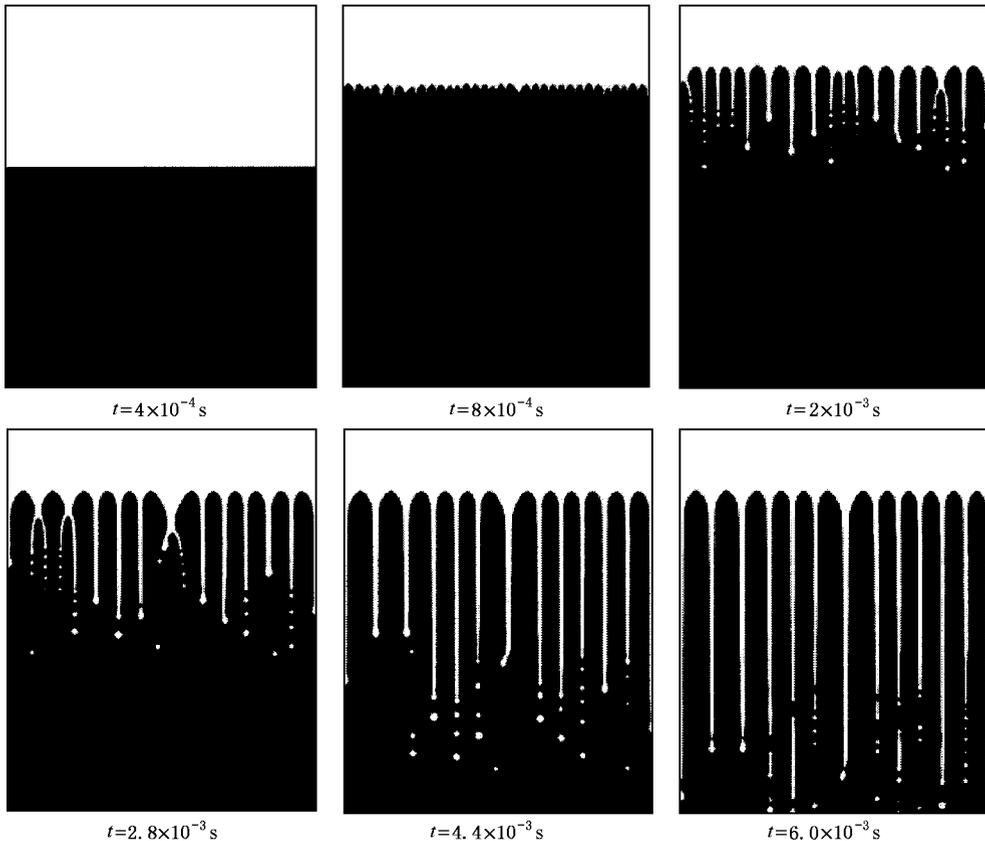


图1 抽拉速度 $V = 0.5\text{cm/s}$ 时界面形态演化过程

3.1. 定向凝固过程的界面形态演化

图 1 为抽拉速度 $V = 0.5\text{cm/s}$ 时的界面形态演化过程,开始时界面为平界面,随后出现了扰动,随着凝固的进行,扰动放大,形成胞状结构,由于初始扰动波长太小,胞晶之间竞争生长,生长快的胞晶通过变粗阻止其相邻胞晶生长,以达到调整胞晶间距的目的,最终形成一种准稳态胞晶结构.从图中还可看出,在胞间沟槽下部有一些封闭小液滴,这种高浓度的小液滴凝固后形成成分偏析点.

3.2. 不同抽拉速度下定向凝固的准稳态结构

图 2 为不同抽拉速度下合金定向凝固达到准稳态时的相场,图 3 为其对应溶质场.由图 2 可见,速度越小,胞晶间距越大,胞间沟槽越深,当 $V = 0.25\text{cm/s}$ 时,沟槽底部已越出计算域之外.相反,速度越大,胞晶间距越小,沟槽越浅,当 $V = 2.5\text{cm/s}$

时,界面只有很小的波动, $V = 3.0\text{cm/s}$ 时,界面始终为平界面.

根据 MS 理论,高速绝对稳定性的临界速度为

$$V_{\text{abs}} = \frac{mc_{\infty}(k-1)D}{k^2\Gamma}, \quad (5)$$

m 为液相线斜率, Γ 为吉布斯-汤姆逊系数, k 为溶质分配系数,采用 Aziz^[9]的计算公式

$$k(V) = \frac{k_0 + V/V_D}{1 + V/V_D}, \quad (6)$$

V_D 为界面扩散速度,将该式代入(5)式可求出 V_{abs} 约为 2.5cm/s .可见,本文模拟结果与 MS 理论基本一致.

表 1 给出了不同抽拉速度下各参数值,由表可见,随着 V 增大,胞晶间距减小,胞晶尖端温度下降,这与尖锐界面模型^[10]中定向凝固接近高速平面生长时,速度越大,界面温度越低的结论一致.从表中还可看出 $v\lambda^2$ 约为常数.

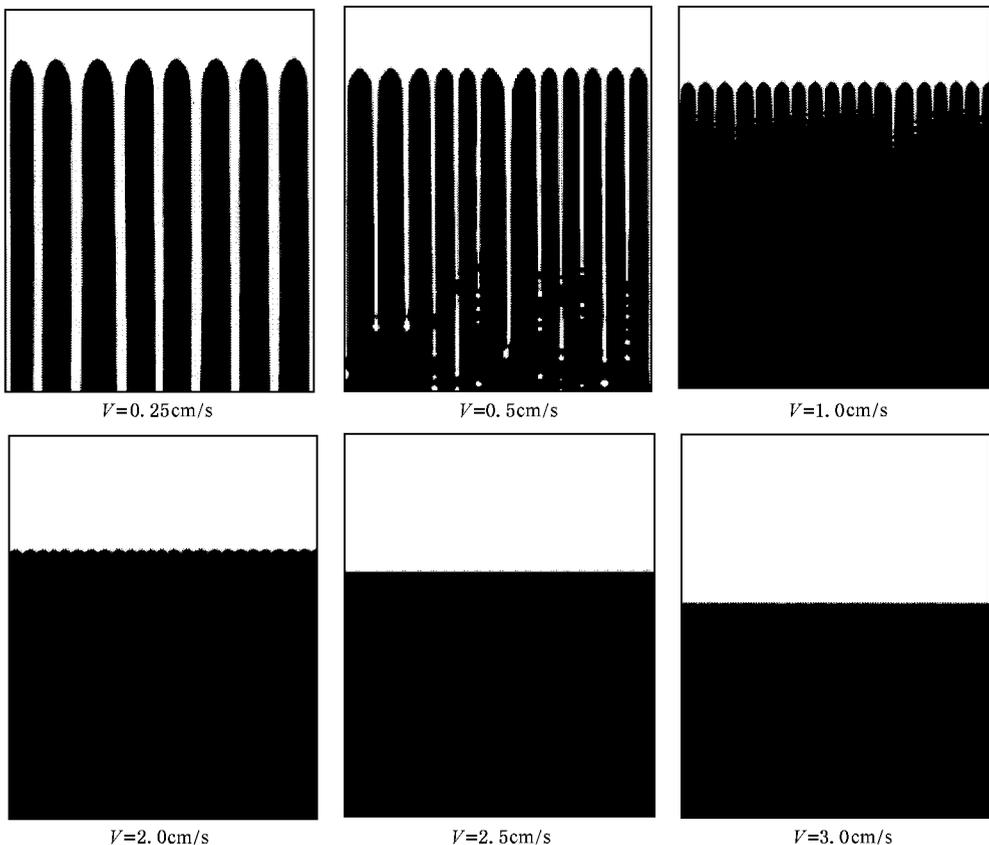


图 2 不同速度下准稳态结果

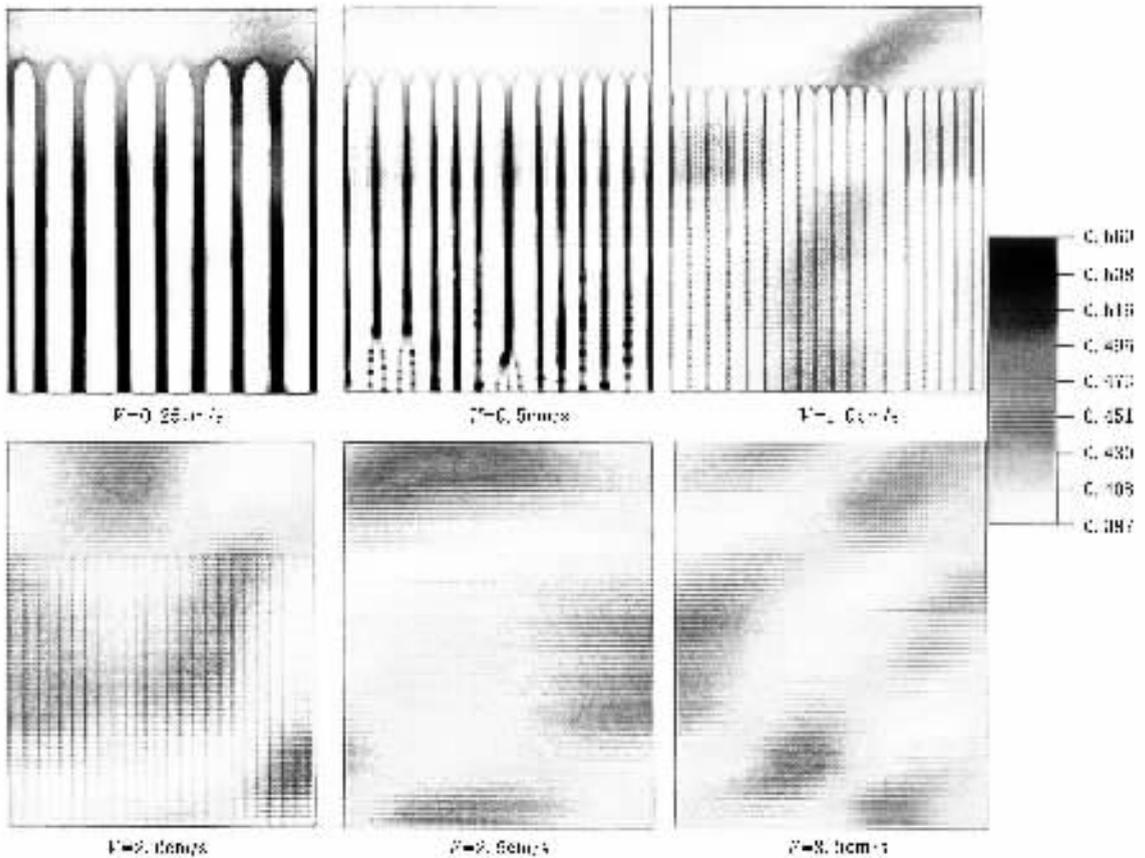


图3 与图2对应的溶质场(图中灰度标尺表示溶质元素Cu的原子分数)

表1 不同抽拉速度下达到准稳态时各参数值

V (cm/s)	$\lambda/10^{-4}$ cm	T_{tip}/K	$C_{L,tip}$	$C_{S,tip}$	$k(V)$	$V\lambda^2/10^{-8}$
0.25	2.53	1578.5	0.437	0.387	0.886	1.60
0.5	1.65	1577.1	0.431	0.391	0.907	1.36
1.0	1.15	1575.0	0.426	0.396	0.930	1.32
2.0	0.82	1570.3	0.424	0.404	0.953	1.35
2.5	—	1567.1	0.424	0.407	0.960	—
3.0	—	1563.2	0.424	0.409	0.965	—

3.3. 溶质截留效应

如图3,速度较小时,溶质再分配明显,故胞晶与胞间沟槽内浓度相差大,胞晶尖端溶质扩散层也较宽,随着速度增大,固、液相浓度差减小,当 $V=3\text{cm/s}$ 时,固相与液相浓度十分接近,溶质截留现象明显.如表1, V 增大,胞晶尖端固相浓度增大,这与经典凝固理论吻合,但尖端处液相浓度下降,却与经典理论相反,这是因为经典理论是建立在局部平衡的基础上,认为 $c_{S,tip} = k_0 c_{L,tip}$,然而实际上随着 V 增大,溶质分配系数 $k(V)$ 是增大的.根据本文计算结果对(6)式进行拟合,得出 $V_D \approx 1.002\text{cm/s}$,图4为 $V_D = 1.002\text{cm/s}$ 时(6)式与计算结果对比图,可见两

者符合较好.

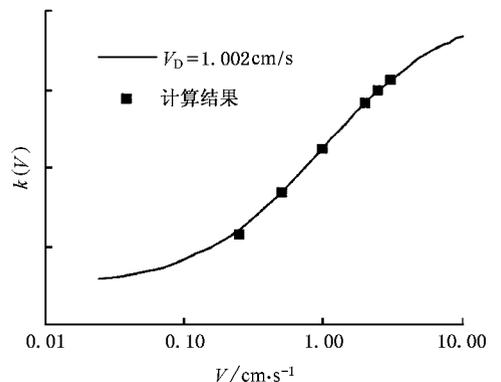


图4 溶质分配系数与速度的关系

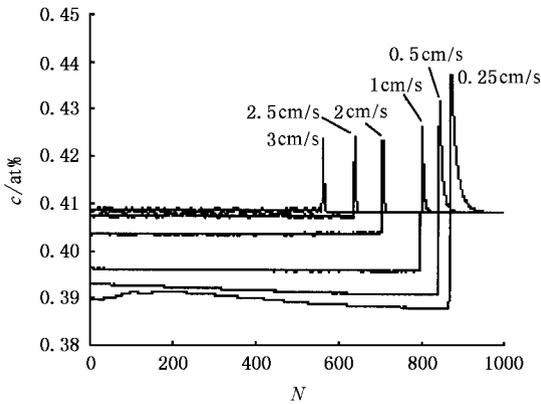


图 5 不同速度下沿生长方向的浓度分布 (N 为网格数)

图 5 为不同抽拉速度下达到准稳态时,沿生长方向的浓度分布,对胞状结构,取通过胞晶尖端轴线上的浓度值,对平界面取计算域中心线上的浓度值.

图中浓度峰值对应固/液界面位置,可见随 V 增大,固液界面位置越低,即尖端温度越低,同时,固相浓度增大,最后在 $V = 2.5\text{cm/s}$ 时固液界面处固相浓度接近 c_{∞} ;另外,速度越高,固相中浓度波动越强烈,速度越小,固液界面前沿溶质扩散边界层厚度越大.

4. 结 论

利用相场模型计算了二元合金高速定向凝固过程,得到了定向凝固时界面形态演化、溶质浓度分布等.计算结果表明,对本文模拟的 Ni-Cu 合金,高速绝对稳定性临界速度约为 2.5cm/s ,与经典理论一致,在接近高速平界面生长时,随着凝固速度增大,胞晶间距减小,胞间沟槽变浅,固液界面温度降低,固液界面处固相浓度增大,液相浓度减小,有效溶质分配系数增大,溶质截留效应更明显.

[1] Mullins W W and Sekerka R F 1964 *J. Appl. Phys.* **35** 444
 [2] Warren J A and Langer J S 1993 *Phys. Rev. E* **47** 2702
 [3] Nestler Britta and Wheeler Adam A 2002 *Computer Physics Communications* **147** 230
 [4] Warren J A and Boettinger W J 1995 *Acta Metall. Mater.* **43** 689
 [5] Boettinger W J and Warren J A 1999 *Journal of Crystal Growth* **200** 583

[6] Yu Y M et al 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2423 [in Chinese] 于艳梅等 2001 *物理学报* **50** 2423]
 [7] Langer J S 1980 *Rev. Mod. Phys.* **52** 1
 [8] Langer J S and Turski L A 1977 *Acta Metall.* **25** 1113
 [9] Aziz M J 1982 *J. Appl. Phys.* **53** 1158
 [10] Kurz W and Fisher D J 1989 *Fundamentals of Solidification* (Switzerland : Trans. Tech. Publications)

Phase field modeling of directional solidification of a binary alloy at high velocities *

Li Mei-E¹⁾ Yang Gen-Cang²⁾ Zhou Yao-He²⁾

¹⁾ School of Material Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

²⁾ State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

(Received 17 December 2003 ; revised manuscript received 7 April 2004)

Abstract

Some computational results on directional solidification of a binary alloy obtained by using the phase field model are reported. Frozen temperature approximation is adopted to simplify the modeling. The onset of morphological instability, the pattern evolution and the solute redistribution are shown. The cell to planar interface transition is modeled near the high velocity absolute stability condition. The cell spacings, tip temperatures and solute partitioning coefficients at different velocities are calculated. The solute trapping is also observed.

Keywords : directional solidification, phase field method, high velocity absolute stability, solute trapping

PACC : 8130, 6480G, 7115Q, 8140

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50395103 and 50271057).