

相场法模拟 NiCu 合金非等温凝固枝晶生长*

王明光 赵宇宏[†] 任娟娜 穆彦青 王伟 杨伟明 李爱红 葛洪浩 侯华

(中北大学材料科学与工程学院,太原 030051)

(2010年10月28日收到;2010年11月22日收到修改稿)

利用相场模型与溶质场、温度场进行耦合计算,以 Ni-40.83% Cu 合金为例模拟了二元合金枝晶生长过程. 系统研究相场模型中相场和温度场耦合强度对枝晶形貌和浓度分布的影响. 模拟结果表明:随着耦合强度的增加,相场受温度场的影响加大,界面前沿变得不稳,扰动被放大,主枝上出现了二次枝晶. 同时,枝晶尖端的生长速率增大,而枝晶尖端的曲率半径减小,枝晶前沿的溶质富集现象也更严重;另外,计算结果与 Ivantsov 理论符合较好.

关键词: 相场法, NiCu 合金, 枝晶生长, Ivantsov 理论

PACS: 05.45.Pq, 05.50.+q, 05.70.Fh, 61.66.Dk

1. 引言

金属凝固过程是材料制备中决定产品质量的关键性环节之一. 如何研究金属凝固微观组织的形成机理与控制方法,一直是人们广泛关注的问题.

凝固过程是一个涉及热量、质量、动量传输以及界面动力学和界面能相互耦合作用的自由边界问题. 在铸件的成形过程中需要控制大量的参数,全部用实验手段不太现实,因而模拟预测手段显得越来越重要. 近年来,随着铸件凝固过程宏观模拟的完善以及计算机软硬件技术的飞速发展,使微观组织模拟^[1]成为可能.

相场法^[2]是近几年出现的模拟方法,也称为直接的微观组织模拟,是以金兹堡-朗道理论^[3]为基础,通过引入相场变量 Φ ($\Phi = 1$ 时表示固相; $\Phi = -1$ 或 0 时,表示液相),用微分方程来体现扩散、有序化势和热力学驱动的综合作用^[4,5]. 相场法可行性好,物理模型清晰,更加接近凝固过程的物理本质^[6].

相场法考虑有序化势与热力学驱动力的综合作用来建立相场方程,其解可描述固液界面的形态和界面的移动,从而避免跟踪复杂固液界面. 此外,相场法通过相场与温度场、溶质场、流

场及其他外部场的耦合,可以有效地将微观与宏观尺度结合起来,从而对金属的凝固过程进行真实的模拟.

本文通过相场与温度场、溶质场相耦合,研究耦合参数和模拟结果的关系,有助于精确确定物性参数和相场参数,以进一步精确模拟凝固组织.

2. 二元合金的相场模型

2.1. 耦合温度场的相场方程

$$\begin{aligned} \tau(\mathbf{n})\partial_t\phi &= [\phi - \lambda u(1 - \phi^2)](1 - \phi^2) \\ &+ \nabla[W^2(\mathbf{n})\nabla\phi] \\ &+ \sum_{m=x,y} \partial_m \left[|\nabla\phi|^2 W(\mathbf{n}) \frac{\partial W(\mathbf{n})}{\partial(\partial_m\phi)} \right], \end{aligned} \quad (1)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D\nabla^2 u + \frac{1}{2} \frac{\partial p(\phi)}{\partial t}, \quad (2)$$

其中无量纲温度 $u = (T - T_M)/(L/C_p)$, 式中, T_M , L 和 C_p 分别是金属熔点,潜热和比热; ϕ 是相场变量; x 和 y 表示坐标轴; t 为时间; D 为热扩散系数; λ 为耦合系数; $\tau(\mathbf{n})$ 和 $W(\mathbf{n})$ 都是界面法向矢量 \mathbf{n} 的函数.

根据 Karma^[7] 的渐近分析,将相场模型参数和尖锐界面模型^[8] 参数联系起来,即

* 国家自然科学基金(批准号:50975263),山西省留学基金(批准号:2010-78),山西省人事厅留学项目,山西省国际科技合作项目资助的课题.

[†] E-mail: wmgkaoyan2008@163.com

$$d_0(n) = a_1 \frac{\omega(n)}{\lambda}, \quad (3)$$

$$\beta(n) = \frac{a_1}{\lambda} \frac{\tau(n)}{\omega(n)} \left[1 - a_2 \lambda \frac{\omega(n)^2}{D\tau(n)} \right], \quad (4)$$

式中, $d_0 = \frac{\sigma T_m c_p}{L^2}$, 为毛细长度, σ 为表面能, $\beta(n)$ 为各向异性的界面动力学系数, $a_1 = 0.8839$, $a_2 = 0.6237$, 由(5)式可以看出, 要消除界面动力学系数对枝晶生长的影响, 耦合系数^[9]应该满足

$$\lambda = \frac{D\tau(n)}{a_2 \omega(n)^2} = 1.6033 \frac{D\tau(n)}{\omega(n)^2}, \quad (5)$$

式中, T_m 为熔体温度, $\omega(n)$ 为表征界面厚度的各向因子的一个函数, $\tau(n)$ 为表征固液界面原子运动的参量. 在模拟中不加扰动^[10], 通过改变热扩散系数的大小来改变耦合系数的大小. 研究耦合强度对非等温凝固枝晶生长过程的影响.

渐近分析将材料参数 d_0, D 与模型参数联系在一起, 这两个参数在影响模拟结果的同时也影响计算量的大小, 因此这两个参数是模拟过程中考虑的关键参数. d_0 和 D 本应该根据材料的特性来决定, 但从方便取值和节约计算量的角度来选取 d_0 和 D 的值, 通过改变热扩散系数的大小来改变耦合系数的大小.

2.2. 溶质扩散方程

在合金的模拟中, 还需要同时解溶质扩散方程, 其扩散方程用自由能密度表示^[11]. 即

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \Delta \cdot \left[\frac{D(\Phi)}{f_{cc}} \Delta f_c \right], \quad (6)$$

式中 $D(\Phi)$ 为溶质扩散系数, f_{cc}, f_c 是自由能密度 f 对浓度的一阶、二阶偏微分.

2.3. 热扩散方程

在研究中, 同时耦合计算了温度场. 潜热影响通过在相应的温度场网格中相场变量的变化量和来估计^[12]. 这样热扩散方程可表示为

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D\Delta^2 T + \frac{L}{c_p} h'(\Phi) \frac{\partial \Phi}{\partial t}, \quad (7)$$

式中 D 是热扩散系数, T 表示温度, L 表示潜热, c_p 是比热容.

3. 计算参数的确定

3.1. 初始条件和边界条件

假设初始晶核半径为 r_0 , 则

$$x^2 + y^2 \leq r_0^2 \text{ 时, } \phi = 1, u = 0, c = c_0;$$

$$x^2 + y^2 \geq r_0^2 \text{ 时, } \phi = -1, u = -\Delta, c = c_0.$$

上式中, x, y 分别是横坐标和纵坐标; Δ 是无量纲过冷度; c_0 是合金初始成分.

在相场计算区域边界, 选择 Zero-Neumann 边界条件^[13].

3.2. 数值计算方法

为了差分方便, 对于相场和温度场的控制方程都采用均匀网格显示算法, 即向前 Euler 法. 引入空间步长 $\Delta x, \Delta y$, 且 $\Delta x = \Delta y$; 时间步长 Δt . 为了获得可靠和稳定的计算结果, 空间步长 Δx 和时间步长 Δt 应满足 $\Delta t \leq W_0$ 和 $\Delta t \leq \frac{\tau_0 \Delta x^2}{5W_0^2}$.

3.3. 物性参数

合金 NiCu 的物性参数^[14]如表 1 所示.

表 1 Ni-40.83% Cu 的热物性参数

参数	数值
T_m/K	1728
$\sigma/(\text{J}/\text{cm})$	3.7×10^{-5}
$\beta/(\text{cm}/\text{ks})$	0.33
$D_T/(\text{cm}^2/\text{s})$	0.155
$C_p/(\text{J} \cdot \text{K} \cdot \text{cm}^{-3})$	5.0
$V_m/(\text{cm}^3/\text{mole})$	7.4

4. 模拟结果与分析

4.1. 对枝晶形貌的影响

相场和温度场的耦合系数 λ 是非常重要的参数, 它决定着热量和凝固的联系, 对晶粒的生长具有绝对的控制作用. 图 1(a), (c), (e) 为分别取 2, 4, 6 时的枝晶形貌, (b), (d), (f) 分别为 (a), (c), (e) 对应的温度场. 当耦合强度为 2 时, 各个方向的生长速度大致相同, 没有明显的最优生长方向, 各向异性不明显, 晶粒形貌近似为球状, 由于晶体生长缓慢, 凝固潜热释放后有足够的时间扩散, 温度边界层较厚, 如图 1. 随着耦合强度的增大, 各向异性程度加强, 各个方向的生长速度变快, 主轴方向的生长优势突出, 枝晶主枝开始变得细长, 界面前沿稳定, 晶核长大为光滑的枝晶, 温度边界层变薄,

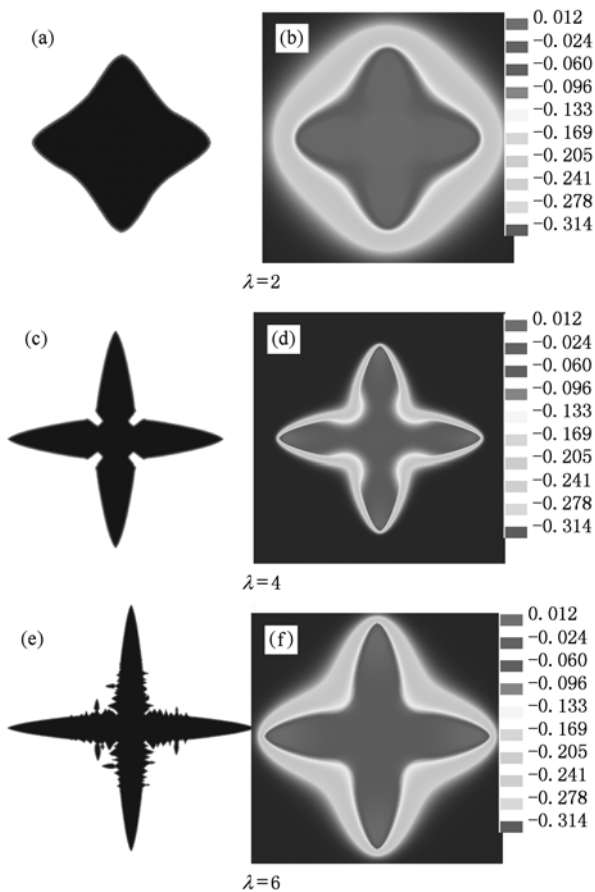


图1 耦合系数对枝晶生长形貌的影响

有利于晶粒的生长,且枝晶主轴的温度梯度明显大于其他方向,是使主轴生长优势突出的主要原因.当耦合强度继续增大到一定程度时,相场受温度场的影响加大,界面前沿变得不稳,扰动被放大,主枝上出现了二次枝晶.

图1(b),(d),(f)为采用表1模拟参数,分别对 $\lambda = 2, 4, 6$ 的三种情况进行模拟计算,迭代计算相同的时间,所得温度场分布:枝晶生长过程中由于释放凝固潜热,从而固相面移动速率大,释放的潜热多,热量来不及扩散,因此温度梯度最大,而在枝晶根部由于界面移动速率小,因此温度梯度最小.

图2为温度场耦合强度对枝晶生长速度的影响.凝固开始时,在枝晶尖端附近初始温度梯度 $-\Delta/\Delta x$ 远大于稳态值,结晶潜热向过冷液相中扩散速度大于稳态,导致瞬态过程中枝晶尖端生长速度大于稳态生长速度.随着生长过程的进行,热量在凝固前沿不断积累,热扩散边界层厚度逐渐增加、温度梯度不断降低,使得热扩散速度降低,枝晶尖

端生长速度逐渐降低直至达到稳态值.

当耦合强度较小时,热扩散率较小,虽然前期生长速度比大耦合的生长速度慢,但由于其熔体内过冷度保持相对较好,其枝晶持续以一逐渐收敛的生长速度的速度长大.

而当耦合强度比较大时,热扩散率较大,枝晶初期生长较快,枝晶快速长大,如图2所示.但是,由于耦合强度较大时熔体内温度的改变较快,释放的潜热使熔体内温度快速升高,过冷度较快消失,枝晶生长速度快速放慢.

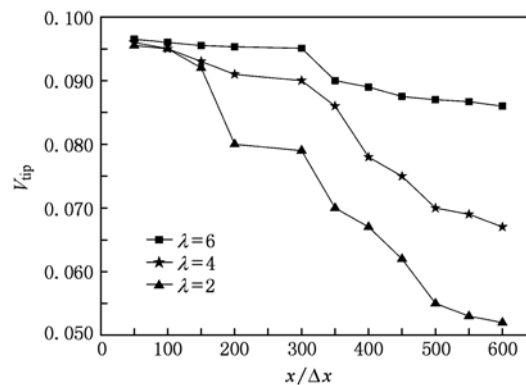


图2 不同耦合系数时沿 x 轴的无量纲枝晶尖端速度

4.2. 耦合强度对枝晶浓度场分布的影响

扩散不仅是由于存在浓度梯度的结果,同样也是由电场、温度梯度或局部的应力状态所引起的.在这里保持其他因素不变,通过改变耦合强度来研究其对浓度场的影响.

图3(a),(b)(c)分别是对耦合强度分别为2,4,6时枝晶的溶质分布情况.可以看出溶质的分布情况与枝晶形貌是相符合的.在枝晶尖端由于界面移动速率大,溶质来不及扩散,因此浓度梯度最大.另外在被二次晶臂包围的界面区域,溶质不易向液相中扩散,因此整个区域的溶质浓度比较高.

从图3可以看到溶质的分布情况与枝晶生长形貌是相符合.枝晶臂中心 Cu 的浓度要低一些,这是由于凝固过程枝晶尖端曲率效应引起过冷,使固相线向下移动,而固相中溶质的扩散速度又大大落后于枝晶生长速度.枝晶凝固的固、液相界面区域出现 Cu 的富集,这是由于凝固过程的溶质再分配,固相由于凝固过程枝晶尖端曲率效应引起过冷,使固相线下移,而固相中溶质的扩散速度又大大落后于枝晶生长速度,使得枝晶中心 Cu 的浓度分布最低.

枝晶凝固界面区域出现 Cu 的富集,是由于凝固过程的溶质再分配,固相中 Cu 的浓度低于初始浓度,液相中溶质的扩散速度也小于枝晶生长速度,凝固析出的溶质不能充分扩散到液相中,从而富集在枝晶前沿.对比分析图 3(a),(b),(c)可知,前者的溶质偏析相对较大,这是由于耦合强度越大,其枝晶生长速度则越大,而枝晶生长界面溶质分配系数随着枝晶生长速度的增大也相应增加,溶质能够充分扩散.同理,随着耦合强度的减小,界面推进速度将减小,液相中溶质的扩散速度相应减小,溶质扩散范围减小.

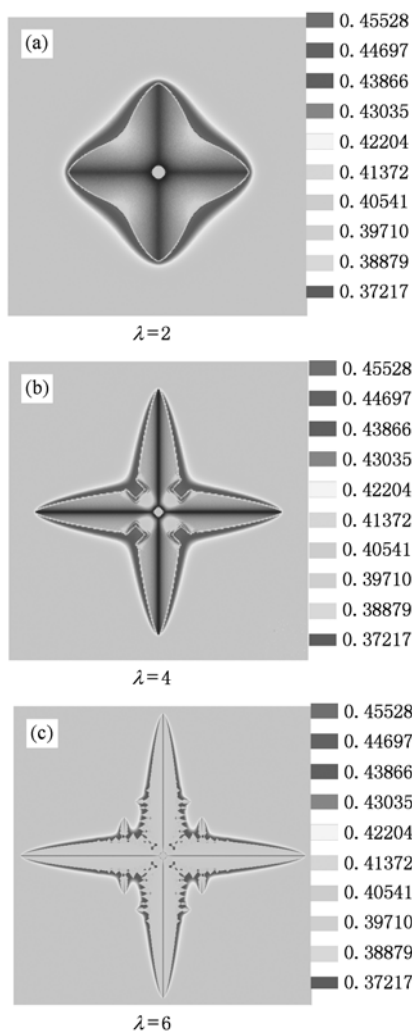


图 3 温度场耦合系数对枝晶浓度的影响

图 4 是枝晶尖端固液界面处的浓度分布情况.从图中还可以看出耦合强度大时的最高溶质浓度和固相中的浓度比耦合强度小时要大,这是因为一方面由于耦合强度大时,枝晶的生长速率快,溶质再分配时析出的溶质多,并且析出溶质的扩散不充

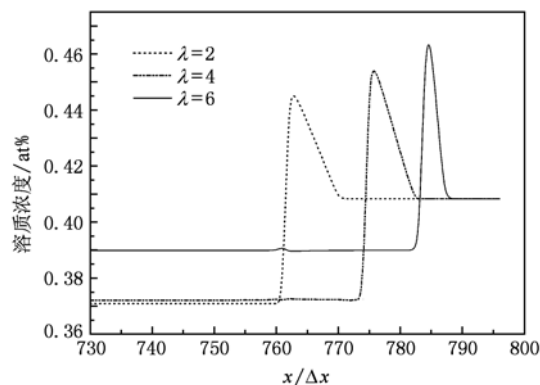


图 4 温度场耦合系数对枝晶尖端浓度分布的影响

分,从而在固液界面上富集更多的溶质.

3.3. 模拟结果与经典枝晶生长理论比较

在 Ivantsov 理论中,假定枝晶为旋转抛物线体,则枝晶尖端曲率半径、生长速度与枝晶尖端前沿固、液界面区域的溶质浓度的关系可表示为

$$Iv(Pe) = \Omega, \quad (8)$$

式中 Ω 为合金凝固的无量纲过饱和浓度,即 $\Omega = (c_L - c_0)/(c_L(1 - k))$. Pe 为 Peclet 数, $Pe = VR/(2D_L)$.

$Iv(Pe)$ 为 Ivantsov 函数,可表示为

$$Iv(Pe) = Pc \exp(Pe) E_1(Pe), \quad (9)$$

E_1 为指数积分函数, $E_1(Pe) = \int_{Pe}^{\infty} \frac{\exp(-z)}{z} dz$

图 5 是 Ivantsov 理论和数值模拟中凝固温度与 Peclet 数的关系曲线,从图中可以看到,随着温度的升高,模拟结果与 Ivantsov 理论解析结果的 Peclet 数都是减小的,并且符合较好.

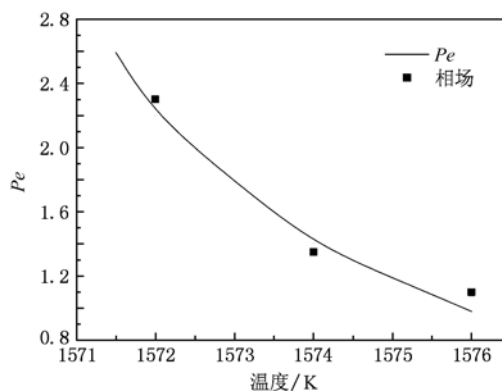


图 5 温度场耦合系数对枝晶生长形貌的影响

5. 结 论

1. 用相场法对 Ni-Cu 合金在等温条件下枝晶长大过程进行了模拟, 计算中将温度场、溶质场与相场相耦合, 真实地反应出二元合金凝固过程中树枝晶的生长过程, 并得到了与结晶理论相一致的枝晶生长规律.

2. 相场和温度场的耦合强度对枝晶的形貌具有绝对控制作用. 随着耦合强度的增加, 温度场对相场的影响加大, 温度场的边界层厚度变薄, 各向异性增大.

3. 温度场耦合强度对枝晶的形貌有很大影响. 耦合强度的增加, 晶粒形貌由紧实枝晶-光滑枝晶-复杂枝晶转变.

- [1] Kobayashi R 1993 *Physica D* **63** 410
- [2] Wheeler A A, Murray B T, Schaefer R J 1993 *Physica D* **66** 243
- [3] Zhao D P, Jing T, Liu B C 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1737 (in Chinese) [赵代平、荆 涛、柳百成 2003 物理学报 **52** 1737]
- [4] 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]
- [5] Zhu C S, Feng L, Wang Z P, Xiao R Z 2008 *Chinese Journal of Mechanical Engineering* **45** 30 (in Chinese) [朱昌盛、冯 力、王智平、肖荣振 2008 机械工程学报 **45** 30]
- [6] Zhu C S, Wang Z P, Jing T, Xiao R Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1502 (in Chinese) [朱昌盛、王智平、荆 涛、肖荣振 2006 物理学报 **55** 1502]
- [7] Yu Y M, Yang G C, Zhao D W, Karma A, Beckermann C 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2423 (in Chinese) [于艳梅、杨根仓、赵达文、Karma A, Beckermann C 2001 物理学报 **50** 2423]
- [8] Ode M, LEE J S, Kim S G, Kim W T, Suzuki T 2000 *ISIJ International* **40** 870
- [9] Suzuki T, Kim S G, Kim W T 2007 *Materials Science and Engineering A* **499** 99
- [10] Karma A, Rappel W 1996 *Phys. Rev. Lett.* **53** 3017
- [11] Wang S, Sekerka R F 1996 *Phys. Rev. E* **53** 3760
- [12] Long WY, Cai QZ, ChenLL, Wei B K 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 0256 (in Chinese) [龙文元、蔡启舟、陈立亮、魏伯康 2005 物理学报 **54** 0256]
- [13] Jeong, J H, GoldenfeldN, DantzigDantzig J A 2001 *Phys. Rev. E* **64** 041602
- [14] Tong X, Beckermann C 2000 *Phys. Rev. E* **61** R49

Phase-field simulation of Non-Isothermal dendritic growth of NiCu alloy^{*}

Wang Ming-Guang Zhao Yu-Hong[†] Ren Juan-Na Mu Yan-Qing Wang Wei
Yang Wei-Ming Li Ai-Hong Ge Hong-Hao Hou Hua

(Material Science and Engineering College, North University of China, Taiyuan 030051, China)

(Received 28 October 2010; revised manuscript received 22 November 2010)

Abstract

Phase-field model is used and The dendrite growth of a Ni-40.83% Cu binary alloy under were simulated by the model coupled with solute field and temperature field. The effects of solidification latent heat on the growth of equiaxed dendrite, distribution of solute field and temperature field in undercooled liquid alloy were analyzed. The results indicate that the dendritic has well-developed secondary arms as undercooling degree increases. Correspondently, the solute Peclet number and the tip speed increases, the tip radius decreases, and the solute segregation in solid-liquid interface increases. The results agree well with Ivantsov theory.

Keywords: phase-field model, Ni-Cu dual single-phase alloy, dendrite growth, Ivantsov theory

PACS: 05.45.Pq, 05.50.+q, 05.70.Fh, 61.66.Dk

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50975263), the Study Abroad Scholarship of Shanxi Province, China (Grant No. 2010-78), the Study Abroad Scholarship of Personnel Department of Shanxi Province, Project Funded by International Cooperation Projects in Science and Ttechnology Issues of Shanxi Province

[†] E-mail: wmgkaoyan2008@163.com