

# 界面润湿性及固相体积分数对颗粒粗化动力学影响的相场法研究\*

王陶 李俊杰 王锦程†

(西北工业大学, 凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2012年9月27日收到; 2012年12月25日收到修改稿)

利用多相场模型模拟了液-固两相体系中固相颗粒的粗化过程, 分析了界面润湿性及固相体积分数对粗化指数、粗化速率及颗粒尺寸分布的影响. 结果表明, 不同固相体积分数下粗化指数基本不变, 但粗化速率常数及尺寸分布与固相体积分数及界面润湿性密切相关. 在完全润湿条件下, 随着固相体积分数的增加, 粗化速率常数逐渐增大; 而非完全润湿条件下, 随着固相体积分数的增加, 粗化速率常数增大速度变缓, 且当润湿性较低、固相分数较大时, 粗化速率常数还将随体积分数的增加而下降. 此外, 模拟结果表明各种润湿条件下颗粒的尺寸分布均随着固相分数增加而变宽, 分布峰值降低, 但非完全润湿条件下峰值下降变缓. 模拟结果为理解不同实验观测结果之间的分歧提供了依据.

**关键词:** 粗化, 相转变, 相场法, 润湿性

**PACS:** 64.70.dm, 81.30.-t, 82.20.wt

**DOI:** 10.7498/aps.62.106402

## 1 引言

颗粒粗化也称为 Ostwald 熟化, 是铸造、半固态成型、液相烧结、喷射沉积等工业加工过程中一种重要的微观组织演化方式. 粗化过程是通过界面面积减小而使系统能量降低的自发过程, 其发生的根本原因在于曲率效应引起的界面平衡浓度变化. 通过溶质扩散, 两相体系中大颗粒不断长大, 小颗粒逐渐分解消失, 从而使颗粒组织的平均尺寸增大, 颗粒的形态及尺寸分布发生改变. 这种组织变化会对材料最终的机械、化学、电学特性产生重大影响. 对于粗化动力学规律的认识和掌握, 是控制粗化过程进而获得理想微观组织的理论前提, 对于指导生产实践具有重要的实际意义.

Lifshitz 和 Slyozov<sup>[1]</sup> 以及 Wagner<sup>[2]</sup> 创建的 LSW 理论是该领域最早、最经典的理论. LSW 理论指出, 达到稳态后, 粗化过程中颗粒平均

半径  $R_p$  随时间  $t$  的增长满足如下关系:  $R_p^3(t) = R_p^3(0) + K_{LSW}t$ , 其中  $R_p(0)$  为初始时刻平均半径,  $K_{LSW}$  为粗化速率常数, 粗化指数等于 3, 且稳态时颗粒相对尺寸分布 (particle size distribution, PSD) 具有自相似性. 但是, 该理论仅仅在基体相无限大而球形颗粒体积分数趋于零的极限条件下才严格成立, 而实际粗化过程中, 颗粒相总有一定的体积分数, 因而 LSW 理论既不可能严格地被实验证明, 也难以指导实践. 随后研究者通过不同的数学处理发展了众多理论模型<sup>[3-7]</sup> 来处理有限颗粒体积分数的情况. 然而, 这些理论模型均假设颗粒保持球形且没有直接接触, 这就限制了此类模型仅仅适用于颗粒体积分数较低的情况. 在更高的固相颗粒体积分数下, 由于颗粒周围溶质场的相互作用, 使颗粒形成平直的边界及尖锐的尖角, 颗粒形貌远远偏离球形, 某些条件下颗粒与颗粒之间还将发生合并连接, 这些复杂性限制了相关理论模型的发展. 研究者通过实验观测对高固相颗粒体积分数下的粗

\* 国家自然科学基金 (批准号: 51101124, 51071128)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CB610401)、教育部博士点基金 (批准号: 20116102120018) 和凝固技术国家重点实验室基金 (批准号: 67-QP-2011) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

化规律进行了分析统计<sup>[8-12]</sup>, 然而不同实验结果之间存在较大差距, 甚至最基本的粗化指数  $n$  都存在分歧. Poiriera 等<sup>[8]</sup> 及 Terzi 等<sup>[9]</sup> 的结果表明高固相体积分数下  $n$  值将大于 3, 并指出这可能与颗粒之间发生合并有关. 然而同样在有合并发生的情况下, Hardy 和 Voorhees<sup>[11]</sup> 及 Bender 和 Ratke<sup>[12]</sup> 的观测结果表明指数  $n$  仍等于 3. 此外就粗化速率常数  $K$  与固相体积分数  $f_p$  的关系而言, 理论模型和大多数实验都表明  $K$  随  $f_p$  的增大而增大, 但 Bender 和 Ratke<sup>[12]</sup> 等发现在 Cu-Co 液相烧结过程中, 不同颗粒体积分数下的粗化速率常数  $K$  基本不变. 也有研究表明粗化速率常数  $K$  随颗粒体积分数增大而减小<sup>[13-15]</sup>. 综上所述, 当前对高固相体积分数下颗粒组织粗化规律的认识尚存在争议. 随固相体积分数的增高, 粗化指数、粗化速率、颗粒尺寸分布等重要参量如何变化, 合并连接机制如何影响粗化动力学规律, 这些问题仍有待进一步研究.

粗化过程与界面的曲率变化密切相关, 由于高固相体积分数下界面形态的复杂性, 很难得到严格的解析模型. 相场法是模拟复杂形貌微观组织的有力工具, 在材料微观组织模拟的多个方面得到了广泛应用<sup>[16-18]</sup>. 对于液-固两相系统中的颗粒粗化过程已经有许多出色的相场模拟研究工作<sup>[19-23]</sup>. 如 Warren 和 Murray<sup>[19]</sup>, Fan 等<sup>[21]</sup>, Wang 等<sup>[21]</sup> 用相场法研究了二维条件下颗粒的粗化情况, Kim<sup>[22]</sup> 通过相场模拟对三维条件下的液固两相系统中球形晶粒的粗化过程进行了研究. 但已往研究只涉及了完全润湿条件下的粗化过程, 忽略了高固相体积分数下颗粒合并连接对组织粗化的影响规律. 本文通过相场法模拟不同固相体积分数下的组织粗化过程, 通过改变界面润湿性这一决定颗粒合并连接程度的首要因素, 着重研究高固相体积分数下合并连接机制对组织粗化动力学的影响规律.

## 2 相场模型及求解

本文采用 Kim<sup>[22]</sup> 推导的多相场模型, 模型简述如下. 对于液固两相系统,  $\phi_1$  为液相,  $\phi_i (i \neq 1)$  为固相, 不同  $\phi_i$  代表不同取向的晶粒, 并且在体系中的每一点都满足

$$\sum_{i=1}^n \phi_i = 1. \quad (1)$$

相场控制方程可表示为

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{N} \sum_{j \neq i}^n s_i s_j M_{ij} \left[ \frac{\delta F}{\delta \phi_i} - \frac{\delta F}{\delta \phi_j} + f^i(c_i) \right. \\ \left. - f^j(c_j) - (c_i - c_j) \bar{\mu} \right], \quad (2)$$

其中,

$$\frac{\delta F}{\delta \phi_i} = \sum_{j \neq i} \left( \frac{\varepsilon_{ij}^2}{2} \nabla^2 \phi_j + \omega_{ij} \phi_j \right), \quad (3)$$

$$f^i(c_i) = \begin{cases} 0 & i \neq n, j \neq n, \\ (\sigma_{ij}/d_0)(c_L - c_L^e) & i \neq n, j = n, \\ -(\sigma_{ij}/d_0)(c_L - c_L^e) & i = n, j \neq n, \end{cases} \quad (4)$$

$N$  为任意格点上共存的非零相场变量个数,  $s_i$  为阶梯函数,  $f^i(c_i)$  表示成分为  $c_i$  的第  $i$  相的自由能密度,  $\varepsilon_{ij}$  为梯度项系数,  $\omega_{ij}$  为双井势高度,  $\sigma_{ij}$  为界面能,  $d_0$  为毛细长度,  $c_L$  为液相浓度,  $c_L^e$  为液相平衡浓度,  $\bar{\mu}$  为化学势. 在经典粗化理论分析中均忽略固相扩散<sup>[1-7]</sup>, 这里做相同处理, 此时溶质扩散控制方程为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot D \sum_i \phi_i \nabla c_i, \quad (5)$$

模型中参数满足如下关系:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{4\sqrt{\xi_{ij}\sigma_{ij}}}{\pi}, \quad \omega_{ij} = \frac{2\sigma_{ij}}{\xi_{ij}}, \\ M_{ij} = \frac{d_0 D \sqrt{2\omega_{ij}}}{(1-k)Q\varepsilon_{ij}^3}, \quad (6)$$

$D$  为扩散系数,  $k$  为分配系数,  $\xi_{ij}$  为界面厚度,  $Q$  为积分常数.

对相场方程 (2), (3), (5) 采用基于均匀网格的显式有限差分进行求解. 采用周期性的边界条件, 选取无量纲化模型参数如下: 液相平衡浓度为  $c_L^e = 0.1$ , 液相的初始浓度为  $c_L^0 = c_L^e - d_0/r_p$ ,  $r_p$  为初始时刻颗粒平均半径, 毛细长度  $d_0 = 0.01$ , 扩散系数  $D = 1$ , 分配系数  $k = 0.5$ , 空间步长  $\Delta x = \Delta y = 1$ , 界面厚度  $\xi = 6\Delta x$ , 时间步长  $dt = 0.1$ . 界面润湿程度用两颗粒之间形成的二面角  $\theta$  来描述 (见图 1), 而根据三相点处界面能的平衡关系:

$$\theta = 2 \cos^{-1} \left( \frac{\sigma_{SS}}{2\sigma_{LS}} \right) \quad (7)$$

可见  $\theta$  的大小由固-固界面能  $\sigma_{SS}$  与固-液界面能  $\sigma_{LS}$  的比值决定. 当  $\sigma_{SS}/\sigma_{LS} > 2$  时,  $\theta = 0^\circ$  即固-固界面被液相完全润湿, 两颗粒之间会形成一层液膜. 当  $\sigma_{SS}/\sigma_{LS} < 2$  时, 为非完全润湿情况, 且随着固-固界面能与固-液界面能比值的减小值,  $\theta$  逐渐增大, 界面润湿性逐渐降低. 本文选取  $\sigma_{SS}/\sigma_{LS} = 2.5$ ,

1.90, 1.81, 1.70, 1.43, 1.0 六种情况, 对应的二面角分别为  $\theta = 0^\circ, 36^\circ, 50^\circ, 64^\circ, 89^\circ, 120^\circ$ .

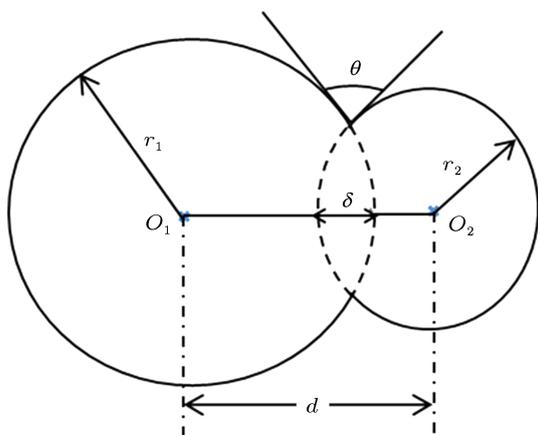


图1 二面角  $\theta$  示意图

### 3 模拟结果

#### 3.1 两颗粒粗化

在研究多个固相颗粒体系粗化之前, 首先模拟两颗粒的粗化过程, 这有助于更加深入理解高固相体积分数下的粗化规律. 这里在  $200 \times 200$  的空间内设定大小两个颗粒, 大颗粒的半径是小颗粒的两倍, 二面角  $\theta$  的变化范围从  $0^\circ$  到  $120^\circ$  不等. 图 2 是  $\theta$  分别为  $0^\circ, 64^\circ, 120^\circ$  时颗粒形貌演化情况. 从中可以看出不同润湿条件下由于二面角不同, 颗粒形态相差很大, 且经历相同的时间后,  $\theta$  越大, 小颗粒尺寸越大. 图 3 是对模拟结果统计得到的不同润湿性下两个颗粒各自面积与其初始面积比值随时间的变化曲线, 从中可以看出, 随着润湿性减小 ( $\theta$  增大), 大颗粒的增大速率和小颗粒的溶解速率都减慢, 即整个组织粗化变缓. 这是因为随着  $\theta$  增大, 受到三相点平衡关系的制约, 两颗粒颈部连接附近的固-液界面自发调整得更加平直, 从而使大颗粒与小颗粒间的界面曲率差值减小, 因而其间液相浓度梯度减小, 扩散速度降低, 使得粗化速率降低.

多颗粒体系中固相分数的增加必然会引起颗粒间距的减小, 在此我们研究了两个颗粒之间的距离对粗化过程的影响. 如图 1, 我们用  $\delta$  表示两颗粒之间的位置关系,  $\delta = d - (r_1 + r_2)$ , 其中  $r_1$  和  $r_2$  分别表示大小两颗粒的半径,  $d$  表示两颗粒圆心之间的距离.  $\delta = 0$  表示两个颗粒相切,  $\delta > 0$  表示两个颗粒相离,  $\delta$  越大, 表示颗粒相距越远,  $\delta < 0$  表示两个颗粒相交,  $\delta$  越小表示相交部分越多. 图 4(a) 和图

4(b) 分别是在完全润湿条件 ( $\theta = 0^\circ$ ) 和非完全润湿条件 ( $\theta = 50^\circ$ ) 时, 不同颗粒间距下归一化颗粒面积随时间的变化. 从中可以看出,  $\theta = 0^\circ$  时, 随颗粒间距的减小, 粗化速率逐渐增大, 而  $\theta = 50^\circ$  时, 随颗粒间距的减小, 粗化速率先增加, 而随着间距的进一步减小粗化速率反而减小. 这是因为随着颗粒间距的减小, 颗粒之间溶质扩散距离减小, 因而大颗粒长大及小颗粒消失的速率加快, 但在非完全润湿条件下, 当颗粒距离减小到一定程度时颗粒之间发生连接, 图 2 和图 3 中的结果已经表明颗粒连接将使颗粒形貌改变, 降低颈部连接处固-液界面的曲率, 从而降低颗粒粗化速率, 当两颗粒相距越近时, 平直化的固-液界面所占比重越大, 由此引起的粗化速率降低效果越显著. 由此可见, 在非完全润湿条件下, 随着颗粒距离的减小, 扩散距离降低和固-液界面变形两种因素对粗化速率的影响效果相反, 两种作用相互竞争造成了图 4(b) 中粗化速率先增大后减小的结果.

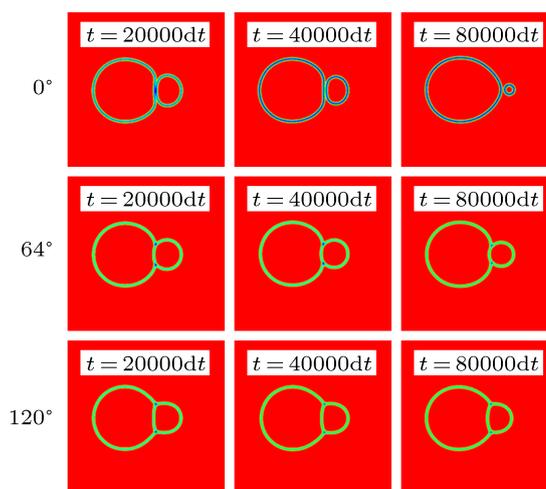


图2 二面角  $\theta$  分别为  $0^\circ, 64^\circ, 120^\circ$  时颗粒形貌演化

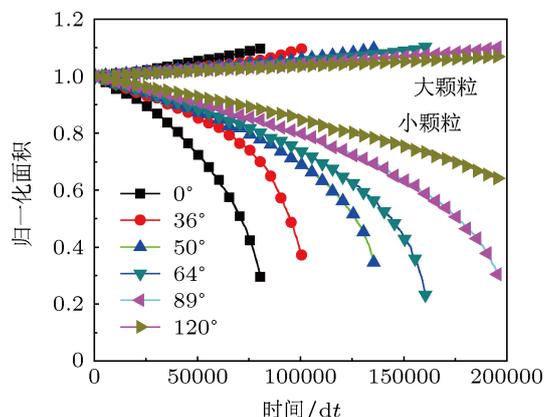


图3 不同  $\theta$  角下颗粒归一化面积随时间的变化

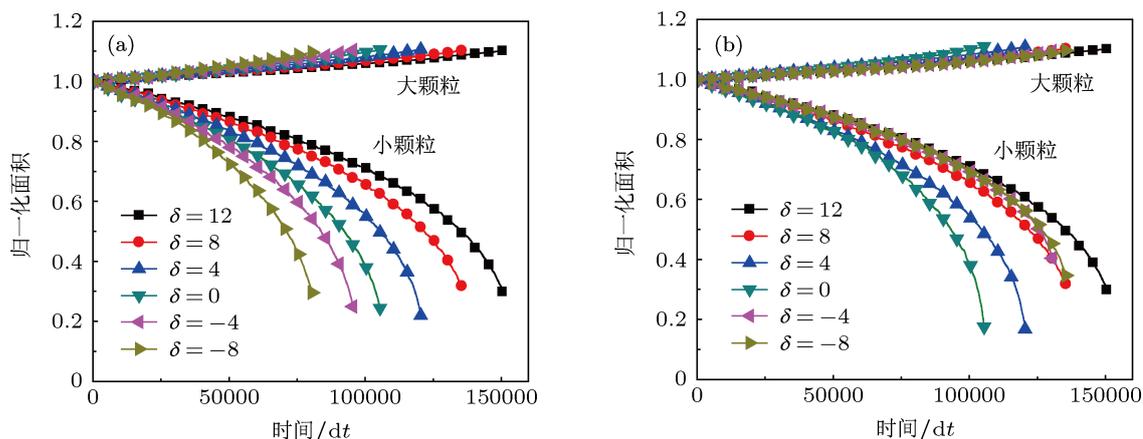


图4 不同颗粒间距下颗粒归一化面积随时间的变化 (a)  $\theta = 0^\circ$ ; (b)  $\theta = 50^\circ$

### 3.2 多颗粒粗化

本文对多颗粒粗化的研究选取了  $2500 \times 2500$  计算区域, 模拟了不同润湿情况下固相颗粒体积分数从 0.1 到 0.8 (对应初始颗粒数从 10000 到 60000) 的组织粗化过程.

#### 3.2.1 颗粒形貌演化

图 5 是完全润湿条件下 ( $\theta = 0^\circ$ ) 固相分数分别为 0.4, 0.6, 0.8 时的颗粒形貌演化图. 从图中可以看出, 在低固相分数下 ( $f_p = 0.4$ ), 颗粒仍可近似保持球形; 固相分数为 0.6 时, 由于颗粒之间的相互影

响, 颗粒发生了明显变形, 部分颗粒边界发生平直化. 当固相分数为 0.8 时, 颗粒的变形增大, 形成了类似于固态晶粒长大过程中的多晶组织.

图 6 是非完全润湿条件  $\theta = 89^\circ$ , 固相分数分别为 0.4, 0.6, 0.8 时颗粒的形貌演化图. 从图中可以看出, 低固相分数下 ( $f_p = 0.4$ ), 颗粒大都还是以圆形均匀分布于空间中, 不过也出现了少量的合并连接. 固相分数为 0.6 时, 由于固相分数较高, 颗粒之间的合并连接增多. 而固相分数为 0.8 时, 几乎所有的颗粒都连在了一起, 形成了固相骨架.

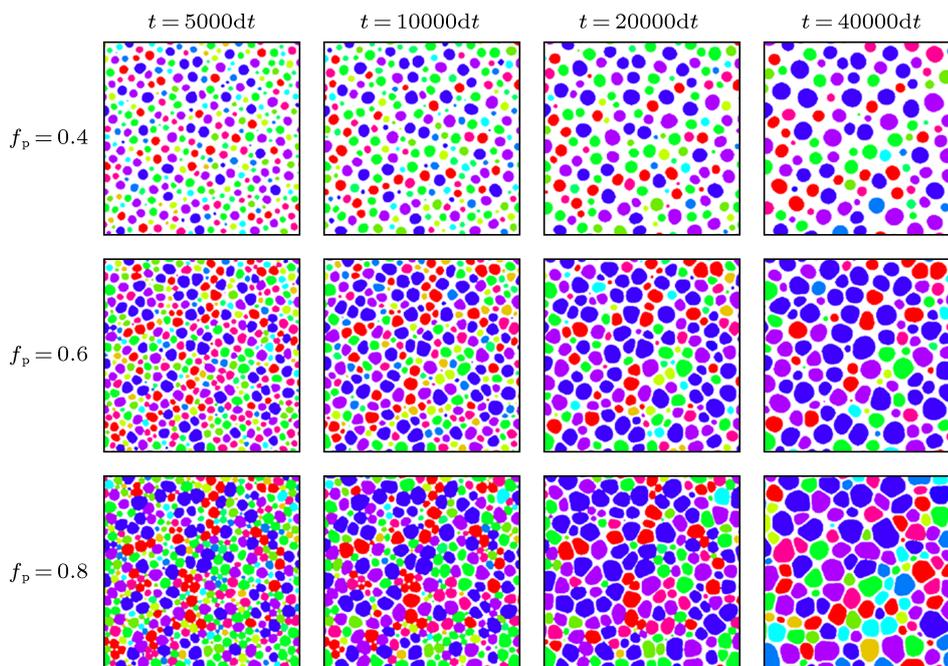


图5 完全润湿条件下  $\theta = 0^\circ$ ,  $400 \times 400$  区域内, 固相分数分别为 0.4, 0.6, 0.8 时的组织形貌演化图

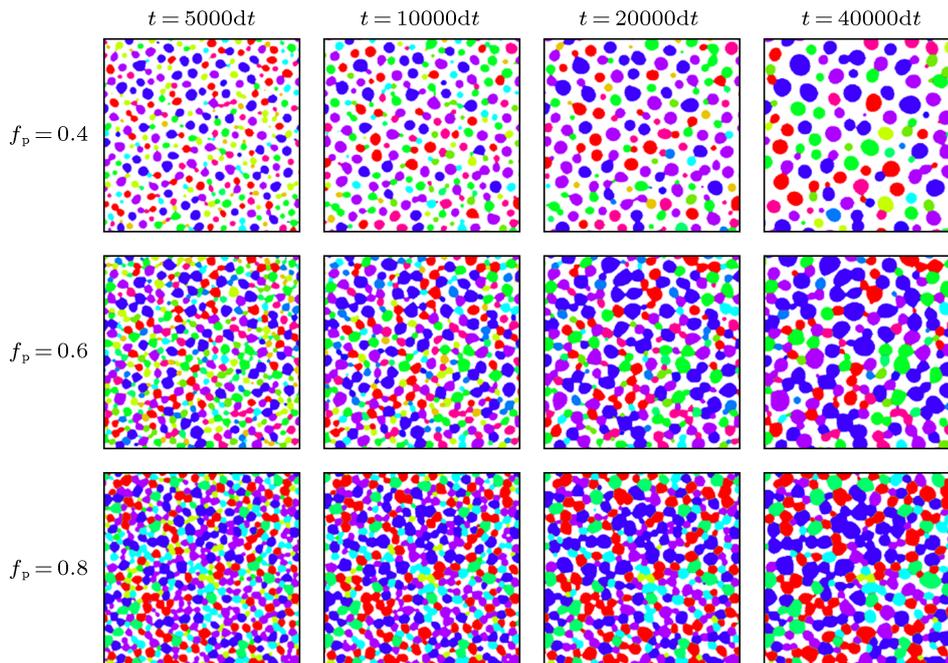


图6 非完全润湿条件下  $\theta = 89^\circ$ ,  $400 \times 400$  区域内, 固相分数分别为 0.4, 0.6, 0.8 时的组织形貌演化图

### 3.2.2 粗化指数 $n$ 与粗化速率常数 $K$

图7为初始固相分数为0.6时, 完全润湿 ( $\theta = 0^\circ$ ) 和非完全润湿 ( $\theta = 89^\circ$ ) 情况下固相分数和颗粒数随时间的变化. 从图中可以看出, 两种情况下, 固相分数的变化均很小, 且二者几乎处于同一水平线上. 在整个粗化过程中, 颗粒数从初始时刻的47746个减少到最终的2738个 ( $\theta = 0^\circ$ ) 和4902个 ( $\theta = 89^\circ$ ). 随粗化的进行, 虽然两种润湿条件下颗粒数均在下降, 但  $\theta = 89^\circ$  时的颗粒数下降得更慢.

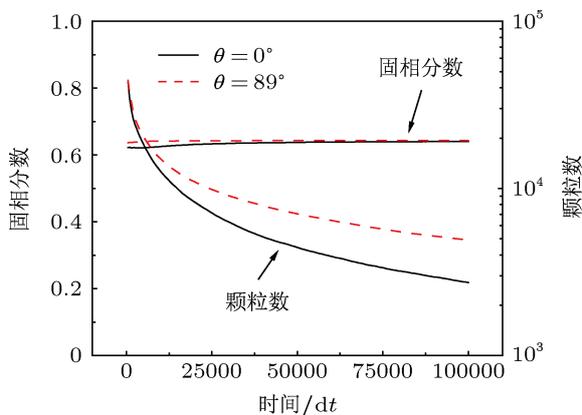


图7 不同润湿情况下固相分数与颗粒数随时间的变化

图8为不同体积分数下颗粒平均半径的三次方  $R_p^3$  随粗化时间的演化结果, 图8(a)和8(b)分别为  $\theta = 0^\circ$  和  $\theta = 50^\circ$  的情况, 图中几何符号为模拟结果, 直线为对模拟结果的线性拟合. 从图中

可以看出, 不论润湿情况和固相分数如何, 平均半径的三次方  $R_p^3$  与时间均较好的满足线性关系, 即粗化指数  $n$  等于3. 然而润湿情况不同, 粗化速率  $K$  的变化有所不同. 从图8(a)中可以看出, 完全润湿

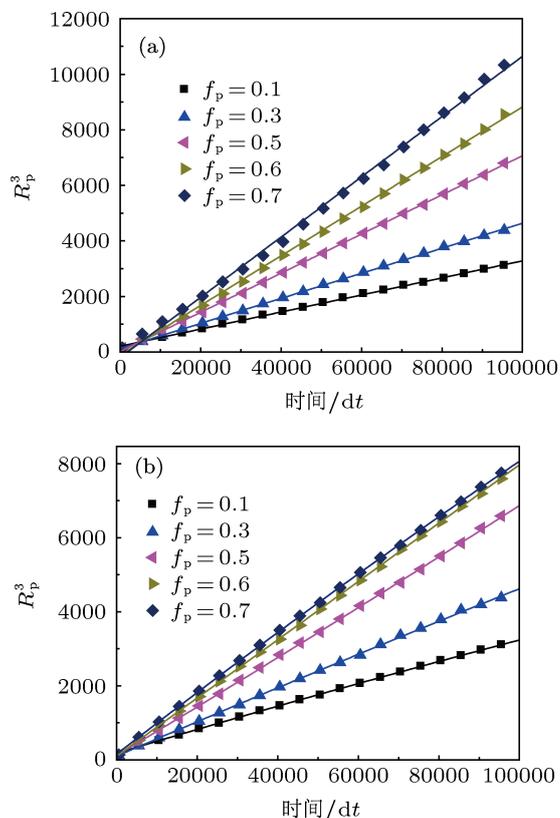


图8 不同固相分数下, 颗粒平均半径的三次方  $R_p^3$  与粗化时间的关系

情况下 ( $\theta = 0^\circ$  时), 随固相分数的增加直线斜率变大, 即粗化速率常数  $K$  增大. 而从图 8(b) 可以看出, 非完全润湿情况下 ( $\theta = 50^\circ$  时), 当固相分数增大到一定程度后, 直线斜率的增大受到明显抑制.

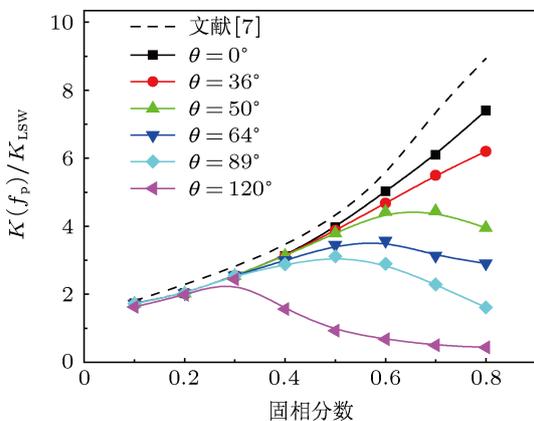


图 9 不同润湿情况下粗化速率常数随固相分数的变化

图 9 是不同润湿情况下粗化速率常数  $K$  随固

相分数  $f_p$  的变化, 其中黑色虚线为 Marsh 和 Glicksman 理论模型 [7] (MG 模型) 的计算结果, 其他符号为本文的模拟结果. 从图中可以看出, 完全润湿情况下,  $K$  随固相分数的增加而增大, 低固相分数下模拟结果与 MG 模型得到的结果较为符合, 当固相体积分数大于 60% 后二者差距增大. 非完全润湿情况下, 随着固相分数的增大, 粗化速率增大的趋势会逐渐下降, 曲线变得较为平缓, 在  $\theta$  较大时还出现  $K$  值先增大后减小的变化趋势. 并且从图中还可以看出, 润湿性越低 ( $\theta$  越大), 粗化速率增大趋势开始下降所对应的体积分数越低.

### 3.2.3 颗粒尺寸分布

图 10 是固相分数  $f_p = 0.5$  时不同时刻下的颗粒尺寸分布, 图 10(a) 和 10(b) 分别为完全润湿情况  $\theta = 0^\circ$  和非完全润湿情况  $\theta = 89^\circ$ . 从图 10(a) 和 10(b) 可以看出迭代计算一万步以后 PSD 随时间基本不变, 具有自相似性, 说明粗化已达到了稳态. 图 11 是不同固相分数下颗粒的稳态尺寸分布情况,

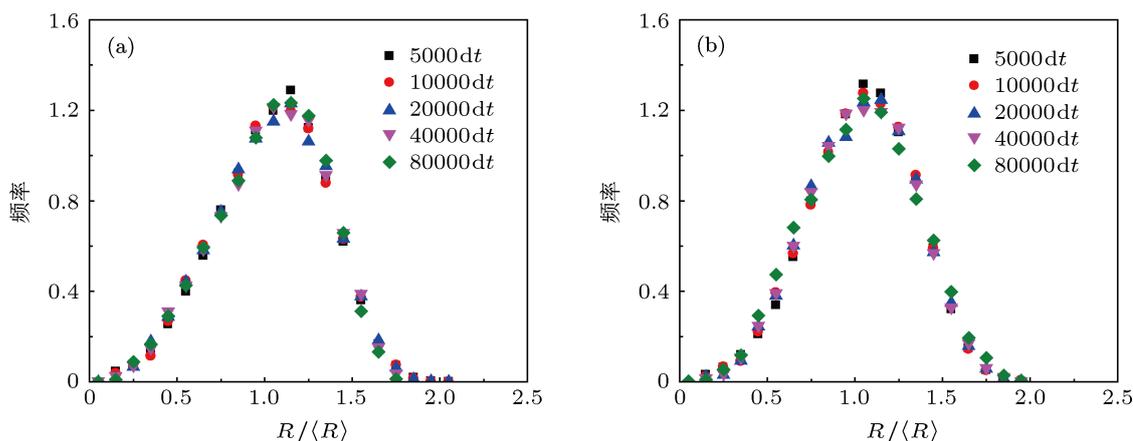


图 10  $f_p = 0.5$  时颗粒尺寸分布 (a)  $\theta = 0^\circ$ ; (b)  $\theta = 89^\circ$

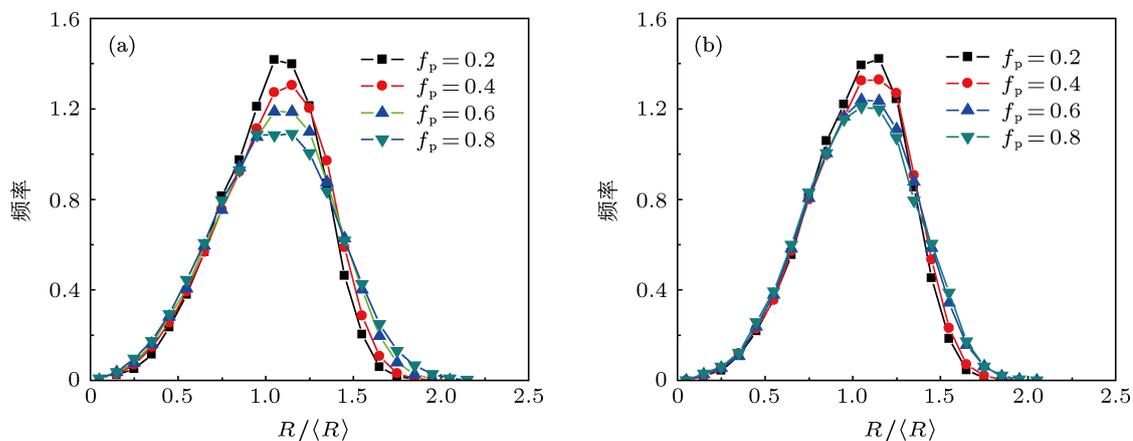


图 11 不同固相分数下颗粒的尺寸分布 (a)  $\theta = 0^\circ$ ; (b)  $\theta = 89^\circ$

图 11(a) 和 11(b) 分别表示  $\theta = 0^\circ$  和  $\theta = 89^\circ$  的情况. 从图中可以看出, 完全润湿情况下, 随固相分数的增大, 颗粒尺寸分布的峰值逐渐减小, 且分布范围变得更加的广泛; 非完全润湿情况下, 具有相同的规律, 但随固相分数的增加颗粒尺寸分布的峰值下降速度变缓. 图 12 是不同润湿性下 PSD 峰值随固相分数的变化, 从图中可以看出随固相分数的增加,  $\theta = 0^\circ$  和  $\theta = 89^\circ$  的 PSD 峰值均逐渐降低, 且下降趋势均在减缓, 但  $\theta = 89^\circ$  时的 PSD 峰值下降变缓的趋势较  $\theta = 0^\circ$  时更加明显.

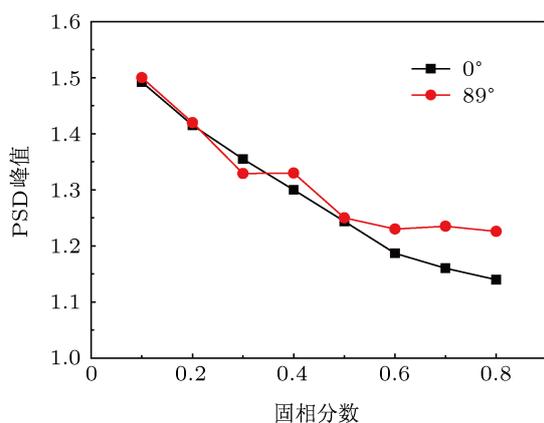


图 12 PSD 峰值随固相分数的变化

## 4 分析讨论

模拟结果显示完全润湿条件与非完全润湿条件下的粗化指数均等于 3. 完全润湿条件下, 粗化指数  $n = 3$  是众多的理论模型和实验结果<sup>[11,12]</sup>所支持的. 因为在完全润湿情况下, 即使高固相分数较高, 颗粒之间也会存在一层液膜(如图 5 所示), 大颗粒与小颗粒之间的溶质交换是一个纯扩散控制的过程. 非完全润湿条件下, 颗粒之间将发生合并连接. Poirier 等<sup>[8]</sup>及 Terzi 等<sup>[9]</sup>的实验结果指出, 在扩散机制和合并连接机制共同作用下, 粗化指数将不再等于 3; 然而在同样有合并连接的 Cu-Co 体系粗化实验中, Bender 和 Ratke<sup>[12]</sup>发现粗化指数仍等于 3; 在颗粒产生合并连接时, 本文模拟获得粗化指数等于 3. 产生上述分歧的原因可能与重力对粗化的影响有关. 颗粒之间持续不断的合并连接要靠颗粒的运动才能发生, 而重力对流正是带动颗粒运动的关键因素. Poirier 等<sup>[8]</sup>及 Terzi 等<sup>[9]</sup>的实验中, 重力对流导致的颗粒运动将使颗粒之间的合并连接不断发生. 而 Bender 和 Ratke<sup>[12]</sup>的实验所用 Cu-Co 体系中固-固界面能相对较小, 在 Cu 熔化后, Co 颗

粒很快就形成了连接程度较高的骨架, 因此重力对流对粗化的影响可以忽略. 在我们的模拟中并未考虑对流下的颗粒运动, 颗粒之间的连接是在模拟初期(5000 步之前)就很快形成的, 随后通过系统本身的粗化过程才会产生新的颗粒连接(大颗粒长大, 小颗粒溶解, 剩下的大颗粒之间逐渐形成新连接), 这需要一个很长的时间. 可见无对流条件下, 颗粒连接的形成本身就受制于奥斯瓦尔德熟化, 整个系统的粗化仍是一个扩散控制的过程, 因而粗化指数等于 3.

对于粗化速率常数  $K$  的变化, 模拟结果显示, 完全润湿情况下  $K$  随固相分数的增加而增大. 这种增大是由于高固相分数下颗粒之间的间距急剧下降、溶质扩散距离减小而引起的. 完全润湿情况下模拟结果与 MG 理论在低固相体积分数范围内基本一致, 但在高固相体积分数下存在偏离. 这是因为高固相体积分数下颗粒之间由于溶质相互作用而使其形状变得不规则(如图 5 所示), 而 MG 理论中仍将颗粒假设为球形. 在非完全润湿情况下, 随固相分数的增加,  $K$  值出现了增速变缓甚至下降的变化规律. 这是因为颗粒连接的形成将减缓颗粒的粗化进程(如前面两颗粒模拟结果所示), 随固相分数的增加以及润湿性的减小, 形成连接的比例升高, 其对  $K$  值增加的阻碍作用不断加强. 这一模拟结果可以很好解释实验中<sup>[11-15]</sup>关于粗化速率常数随体积分数变化规律的一些分歧. Hardy 和 Voorhees<sup>[11]</sup>在 Sn-Pb 系统的实验中发现粗化速率常数  $K$  随固相分数的增加而升高, 而 Bender 和 Ratke<sup>[12]</sup>在 Cu-Co 合金中的实验结果则表明  $K$  值随固相分数的增加变化不明显. 虽然上述实验中均有颗粒连接出现, 但 Hardy 和 Voorhees<sup>[11]</sup>采用的 Sn-Pb 系统中富 Sn 颗粒之间的固-固界面能接近 2 倍的固液界面能, 只有少数颗粒之间发生了合并连接, 形成晶界, 对  $K$  值的阻碍较小, 这与图 9 中  $\theta = 36^\circ$  的情况类似. 而 Bender 和 Ratke<sup>[12]</sup>采用的 Cu-Co 体系中固-固界面能相对较小, 因而高固相体积分数下组织为连接程度较高的骨架, 对  $K$  值的阻碍较大, 这与图 9 中  $\theta = 50^\circ$  或  $\theta = 64^\circ$  的情况类似. 模拟结果还显示, 当二面角很大且固相分数也很大时,  $K$  值还可能随固相分数的增加而下降, 这一点与高固相体积分数下的实验结果相符合<sup>[13-15]</sup>.

经典的 LSW 理论以及众多的理论模型均指出颗粒的尺寸分布具有自相似性, 且随着固相体积分

数的增加尺寸分布峰值降低,且降低的趋势逐渐放缓,尺寸分布范围变宽,本文结果也很好地证实了这一点.上述理论分析结果都是在忽略颗粒之间连接(即完全润湿)条件下得出的.在非完全润湿情况下,本文模拟结果显示 PSD 峰值随固相分数的增加也是减小的,在低固相分数时,峰值减小的速度与完全润湿情况下的相当,但在高固相分数下时,峰值减小的速度明显要比完全润湿情况下更慢.这应该也与高固相分数、非完全润湿条件下所形成的大量的固-固界面有关,具体机制还有待进一步探究.

## 5 结论

本文利用多相场模型模拟了液固两相体系中固相颗粒的粗化过程,统计了不同固相体积分数下

的组织粗化规律,分析了界面润湿性以及固相分数对粗化指数、粗化速率以及颗粒尺寸分布的影响.结论如下:

1) 无对流条件下,颗粒的合并连接需要通过颗粒本身的粗化长大而形成,受制于奥斯瓦尔德熟化过程,因此整个系统的粗化过程主要是在扩散控制条件下进行的,粗化指数等于 3;

2) 完全润湿条件下,粗化速率常数随固相分数的增加而增大;而非完全润湿条件下,颗粒之间的连接将使粗化速率常数的增大变缓,当润湿性较低且固相分数较大时,粗化速率常数还将随体积分数的增加而下降;

3) 颗粒尺寸分布 PSD 具有自相似性,并且随固相分数的增加,在各种润湿条件下颗粒尺寸分布均变宽,分布峰值降低,但非完全润湿条件下峰值下降变缓.

- 
- [1] Lifshitz I M, Slyozov V V 1961 *J. Phys. Chem. Solids* **19** 35
- [2] Wagner C 1961 *Z. Elektrochem.* **65** 581
- [3] Ardell A J 1972 *Acta Metall.* **20** 61
- [4] Brailsford A D, Wynblatt P 1979 *Acta Metall.* **27** 489
- [5] Voorhees P W, Glicksman M E 1984 *Acta Metall.* **32** 2001
- [6] Mardar M 1987 *Phys. Rev. A* **36** 858
- [7] Marsh S P, Glicksman M E 1996 *Acta Mater.* **44** 3761
- [8] Poirier D R, Ganesan S, Andrews M, Ocansey P 1991 *Mater. Sci. Eng. A* **148** 289
- [9] Terzi S, Salvo L, Suery M, Dahle A K, Boller E 2010 *Acta Mater.* **58** 20
- [10] Kailasam S K, Glicksman M E, Mani S S, Fradkov V E 1999 *Metall. Mater. Trans. A* **30** 1541
- [11] Hardy S C, Voorhees P W 1988 *Metall. Mater. Trans. A* **19** 2713
- [12] Bender W, Ratke L 1998 *Acta Mater.* **46** 1125
- [13] Manson-Whitton E D, Stone I C, Jone J R, Grant P S, Cantor B 2002 *Acta Mater.* **50** 2517
- [14] Yang S C, Higgins G T, Nash P 1992 *Mater. Sci. Technol.* **8** 10
- [15] Underhill R P, Grant P S, Cantor B 1993 *Mater. Des.* **14** 45
- [16] Yu Y M, Yang G C, Zhao D W, Lü 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]
- [17] 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]
- [18] Li J J, Wang J C, Xu Q, Yang G C 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1514 (in Chinese) [李俊杰, 王锦程, 许泉, 杨根仓 2007 物理学报 **56** 1514]
- [19] Warren J A, Murray B T 1996 *Mode. Simul. Mater. Sci. Eng.* **4** 215
- [20] Fan D, Chen S P, Chen L Q, Voorhees P W 2002 *Acta Mater.* **50** 1895
- [21] Wang K G, Ding X, Chang K, Chen L Q 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 061801
- [22] Kim S G 2007 *Acta Mater.* **55** 6513

# Phase field modeling of the influence of interfacial wettability and solid volume fraction on the kinetics of coarsening\*

Wang Tao Li Jun-Jie Wang Jin-Cheng<sup>†</sup>

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

(Received 27 September 2012; revised manuscript received 25 December 2012)

## Abstract

Coarsening of solid particles in a solid-liquid two-phase system with high solid volume fraction is studied using the multiphase-field model. The influences of interfacial wettability and solid volume fraction on growth exponent, coarsening rate, and particle size distribution (PSD) are analyzed. It is found that the growth exponent is independent of the volume fraction, while the coarsening rate constant and the PSD are closely related to the interfacial wettability and the solid volume fraction. Under the completely wetting condition the coarsening rate constant increases with volume fraction increasing, but this variation is insignificant under the incompletely wetting condition. Moreover, when the wettability is low and volume fraction is high, the coarsening rate may also decrease with volume fraction increasing. The simulation results also show that with the increase of volume fraction, the peak frequency decreases and the PSD becomes broader, but the fall of the peak frequency under the incompletely wetting condition is slower than under the completely wetting condition. The simulation results provide an insight into the discrepancy between different experimental observations.

**Keywords:** coarsening, phase transformation, phase field method, wettability

**PACS:** 64.70.dm, 81.30.-t, 82.20.wt

**DOI:** 10.7498/aps.62.106402

---

\* Supported by National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 51101124, 51071128), National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB610401), the Doctoral Program of Higher Education, China (Grant No. 20116102120018), Free Research Fund of State Key Laboratory of Solidification Processing, China (Grant No. 67-QP-2011).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn