

相场模型模拟液固界面各向异性作用下 自由枝晶生长*

赵达文 李金富†

(上海交通大学材料科学与工程学院, 金属基复合材料国家重点实验室, 上海 200240)

(2008 年 11 月 30 日收到 2009 年 2 月 10 日收到修改稿)

采用自适应有限元方法求解相场模型, 分别对界面能各向异性和界面动力学各向异性条件下自由枝晶生长过程进行了模拟. 计算表明两种各向异性均显著影响枝晶的生长, 随着各向异性的增大枝晶尖端生长速度增大, 尖端半径降低. 两种各向异性对自由枝晶生长有着不同形式的影响, 在界面能各向异性条件下, 枝晶生长稳定性系数与各向异性系数成幂函数关系, 而在动力学各向异性条件下, 稳定性系数与各向异性系数成线性关系.

关键词: 界面能各向异性, 动力学各向异性, 自由枝晶生长, 相场模型

PACC: 6150J, 6810C, 6810J, 8130F

1. 引 言

枝晶生长是凝固过程中最普遍的生长方式之一, 其中过冷熔体中的自由枝晶生长是凝固科学中的一个基础问题, 同时也是理解其他复杂凝固现象的前提^[1]. 枝晶形态和生长速度等不仅与液固两相中的热、溶质扩散现象有关, 同时还与液固界面上的诸多物理性质如界面能、界面动力学等密切相关. 由于晶体中原子按照特定对称性排列, 导致液固界面能、界面动力学具有不同程度的各向异性. 微观可解性理论指出^[2-5], 在枝晶生长过程中液固界面各向异性不仅决定了枝晶生长方向, 同时还在很大程度上影响着枝晶生长行为. 由于用实验方法研究各向异性在枝晶生长过程中的作用存在一定困难, 有必要以数值模拟方法对其进行系统的研究.

凝固问题的数学模型是一个典型的自由边界问题, 凝固过程中液固界面形状和位置不断变化, 在数值求解过程中必须使用复杂的算法追踪界面位置. 近年来发展起来的相场模型^[6,7]以 Ginzburg-Landau 理论为基础, 通过引入序参量场把液固界面由尖锐界面拓展为弥散界面, 使得在整个计算区域中所有变量都连续可微, 并且可以使用统一的控制方程描述, 不必区分各个相和界面. 由于避免了求解过程中

追踪界面的困难以及由此引起的误差, 相场模型近年来在凝固组织演化问题的研究上得到了广泛应用^[8-18]. 随着理论模型^[19,20]和求解方法^[21]两方面的进展, 目前已经可以对单相合金凝固的诸多问题进行定量模拟. 本文使用相场模型分别对界面能各向异性、动力学各向异性作用下自由枝晶生长过程进行定量模拟, 以揭示两种不同的各向异性作用下的生长规律.

2. 相场模型

本文采用 Karma 和 Rappel^[19]提出的纯物质凝固相场模型. 该模型可以同时消除由于液固界面由尖锐界面拓宽为弥散界面而引入的三种非平衡效应, 使得在求解时可以在使用与微观组织特征尺度同一量级的界面厚度, 从而极大地降低了求解计算量. 该模型的二维无量纲形式为

$$\begin{aligned} \tau(\theta) \frac{\partial \phi}{\partial t} = & \nabla \cdot [W^2(\theta) \nabla \phi] \\ & + \frac{\partial}{\partial x} \left(|\nabla \phi|^2 W(\theta) \frac{\partial W^2(\theta)}{\alpha \partial \phi_x} \right) \\ & + \frac{\partial}{\partial y} \left(|\nabla \phi|^2 W(\theta) \frac{\partial W^2(\theta)}{\alpha \partial \phi_y} \right) \\ & + [\phi - \lambda \alpha (1 - \phi^2)] (1 - \phi^2), \quad (1) \end{aligned}$$

* 国家自然科学基金(批准号: 50571068)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: jfli@sjtu.edu.cn

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

其中, θ 为界面法向量与 x 轴的夹角, ϕ 为序参量, $u = (T - T_m)(L/c_p)$ 为无量纲温度 (T 为热力学温度, T_m 为熔点, L 为结晶潜热, c_p 为等压热容), D 为热扩散系数, λ 为耦合常数, τ 为弛豫时间, W 为弥散界面厚度. 这里, 弛豫时间和界面厚度均为 θ 的函数, $W(\theta) = W_0 a_c(\theta)$, $\tau(\theta) = \tau_0 a_k(\theta)$ ($a_c(\theta)$, $a_k(\theta)$ 是与各向异性有关的函数), 具体形式见计算结果与讨论部分.

相场模型薄界面渐近分析^[19]给出相场模型中各参数间的关系

$$d(\theta) = a_1 \frac{W(\theta)}{\lambda}, \quad (3)$$

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

式中 $d(\theta) = d_0 a_c(\theta)$ 为毛细长度, a_1, a_2 为与相场模型中插值函数有关的常数, 本文取 $a_1 = 0.8839$, $a_2 = 0.6267$.

计算采用 Zero-Neumann 边界条件, 在边界上有

$$\frac{\partial \phi}{\partial n} = 0, \quad \frac{\partial u}{\partial n} = 0.$$

初始条件为

$$\begin{aligned} \phi &= 1, \quad u = 0 \quad (r \leq r_0), \\ \phi &= -1, \quad u = -\Delta \quad (r > r_0), \end{aligned}$$

其中 r_0 为初始晶核半径, Δ 为初始无量纲过冷度.

由于所求解问题的对称性, 求解过程中只计算第一象限内的部分, 此时的初始晶核为半径 r_0 的 $1/4$ 圆形.

3. 相场模型求解与计算参数确定

本文采用自适应有限元方法求解相场模型. 在自适应网格中总节点数与界面长度成正比, 而界面长度则与枝晶臂长度成正比^[22], 所以在相同精度前提下自适应网格中节点数比均匀网格降低一阶, 即可以使求解计算量降低一阶. 选择四分树作为动态自适应网格数据结构, 根据 Zienkiewicz-Zhu^[23]误差估计结果来调整自适应网格.

3.1. 相场模型离散与求解

采用 Galerkin 加权余量法对相场方程 (1)(2) 进行离散, 在单元内有 $\phi = N\Phi$, $u = Nu$, 其中 $N = (N_1, \dots, N_n)$, N_i 为形函数, $u = (u_1, \dots, u_n)^T$, $\Phi =$

$(\phi_1, \dots, \phi_n)^T$, n 为单元内节点数目. 在时间域上采用向前差分格式, 离散后的方程为

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega_e} N^T N \tau(\theta) d\Omega \Phi \\ &= \int_{\Omega_e} N^T [\phi - \lambda u (1 - \phi^2)] (1 - \phi^2) d\Omega \\ & \quad - \int_{\Omega_e} W^2(\theta) (N_x^T N_x + N_y^T N_y) d\Omega \Phi \\ & \quad + \int_{\Omega_e} W(\theta) \frac{\partial W(\theta)}{\partial \theta} (N_x^T N_y - N_y^T N_x) d\Omega \Phi, \quad (5) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega_e} N^T N d\Omega \partial_t u \\ &= -D \int_{\Omega_e} (N_x^T N_x + N_y^T N_y) d\Omega u \\ & \quad + \frac{1}{2} \int_{\Omega_e} N^T N \partial_t \Phi d\Omega, \quad (6) \end{aligned}$$

其中, $N_x = (\partial N_1 / \partial x, \dots, \partial N_n / \partial x)$, $N_y = (\partial N_1 / \partial y, \dots, \partial N_n / \partial y)$, N_x^T, N_y^T 分别为对应的转置矢量.

把方程 (5)(6) 对网格内所有单元进行组装, 即得到对应的相场和温度场线性方程组. 针对该方程左侧矩阵稀疏性的特点, 采用非零元素按行压缩存储, 并以 ICCG 方法迭代求解.

3.2. 计算参数确定

d_0/W_0 代表毛细长度与弥散界面厚度的比值. 计算中 d_0/W_0 取值越小, 则界面厚度越大, 亦即计算所采用的空间步长 Δx 越大, 可以显著降低求解计算量; 但是选取过大的界面厚度会降低计算结果的精度. 在此 d_0/W_0 分别取 0.554, 0.227, 0.1385 和 0.0692 进行试算, 直到计算得到的生长速度值变化小于 5%, 最终确定 $d_0/W_0 = 0.554$.

空间步长 Δx 取值很大程度上决定了求解计算量. 但是过大的空间步长会降低精度, 并且会引入明显的网格各向异性. 本文中在保持其他参数不变的条件, 设定从 $\Delta x/W_0 = 3.2$ 开始以 0.2 为间隔逐渐减小 $\Delta x/W_0$ 值分别进行计算, 以考察空间剖分步长对计算精度的影响. 最终按照生长速度值变化小于 5% 为标准选择 $\Delta x/W_0 = 0.4$, 同时按照计算稳定性的要求选取时间步长 $\Delta t = 0.008\tau_0$.

此外, 在本文中初始晶核半径 $r_0 = 6$, 计算区域

边长为 $1024\Delta x$ 的正方形.在计算枝晶尖端速度时,通过对高阶插值来确定枝晶尖端位置以避免生长速度值的振荡^[22].此外,本文中使用了 Karma 等^[19]提出的方法,通过计算序参量场梯度值来给出枝晶尖端半径.

4. 计算结果与讨论

4.1. 界面能各向异性作用下的枝晶生长

如上所述,在液固界面上存在界面能与动力学各向异性.本节中首先研究界面能各向异性作用下自由枝晶生长行为.在相场模型中与界面能相关的是弥散界面厚度 $W(\theta)$,而与界面动力学效应相关的是原子弛豫时间 $\tau(\theta)$.这里选择 W 具有四重对称性 $W(\theta) = W_0 a_k(\theta) = W_0(1 + \epsilon_c \cos 4\theta)$,弛豫时间 $\tau(\theta) = \tau_0 a_k(\theta) = \tau_0(1 + \epsilon_c \cos 4\theta)^2$,其中 ϵ_c 为界面

能各向异性系数.在(4)式中令 $\lambda = (D\tau_0)/(a_2 W_0^2)$,使得动力学系数 $\beta(\theta) = 0$,界面上不存在动力学效应,从而可以单独考察界面能各向异性的影响.

选取无量纲过冷度 $\Delta = 0.75, 0.85$, $\epsilon_c = 0.01 - 0.06$,对不同界面能各向异性情形下枝晶生长过程进行模拟.在不同各向异性系数取值的计算结果中,固相均以枝晶方式沿 $\langle 100 \rangle$ 方向生长.图 1(a)~(d)分别为 $\epsilon_c = 0.06, \Delta = 0.75$ 计算 5×10^4 步时枝晶形态、相应的自适应网格、温度场以及温度场放大图.对比图 1(a)与(b)可见单元尺寸在液固界面附近序参量、温度急剧变化的区域内最细小,并随着与界面距离的增加逐渐过渡到较粗的单元.由图 1(c)和(d)中的温度场可见,由于界面能的作用界面温度随界面曲率的变化而变化,而不是自由枝晶生长 Ivantsov 解^[24]所预测的等温面,其中图 1(d)中白色粗实线为液固界面.

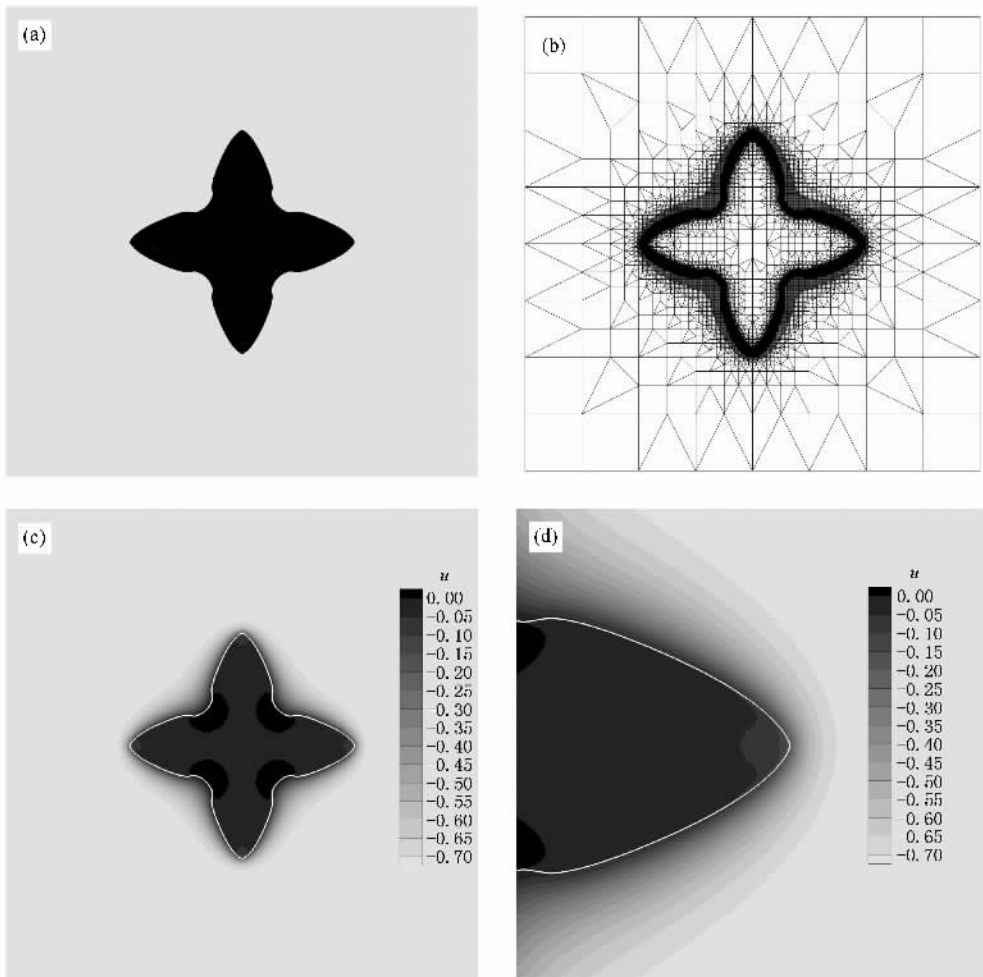


图 1 界面能各向异性作用下的枝晶生长 $\Delta = 0.75, \epsilon_c = 0.06$. (a) 枝晶形貌, (b) 自适应网格, (c) 温度场, (d) 图(c) 枝晶尖端部分放大图

图 2 为 $\epsilon_c = 0.06, \Delta = 0.75$ 模拟得到的枝晶尖端生长速度 V_{tip} 、半径 ρ_{tip} 与时间关系. 由于初始晶核半径以及温度场通常与稳态值不相同, 在枝晶生长初期存在从非稳态向稳态生长过渡的瞬态过程. 这里初始晶核半径大于稳态枝晶尖端半径, 因此在瞬态过程中尖端半径值不断减小, 以加快结晶潜热向液相中扩散的过程. 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. 此外在所有计算结果中枝晶尖端半径均比生长速度更快达到稳态值, 这与 Almgren 等^[25]的理论分析结果一致.

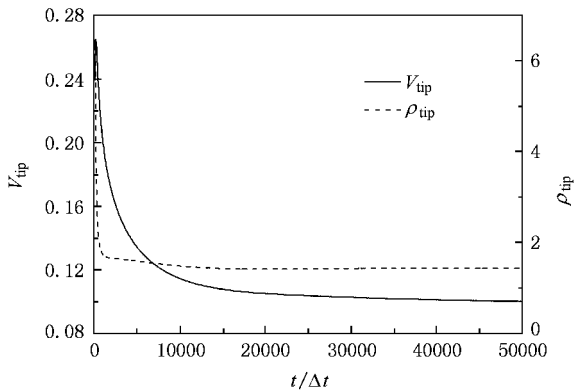


图 2 瞬态阶段枝晶尖端生长速度 V_{tip} 、半径 ρ_{tip} 与时间的关系 $\Delta = 0.75, \epsilon_c = 0.06$

枝晶尖端的稳态生长速度 V_{tip} 和半径 ρ_{tip} 是描述自由枝晶生长的两个关键参数, 由它们可进一步求出稳定性系数 σ^*

$$\sigma^* = 2Dd_0 / (V_{tip}\rho_{tip}^2) \quad (7)$$

在枝晶生长的临界稳定性理论^[26]中 σ^* 是与界面能各向异性系数 ϵ_c 无关的常数; 而在微观可解性理论^[5]中当动力学系数 $\beta = 0$ 时有 $\sigma^* \propto \epsilon_c^{7/4}$.

图 3 (a) (b) 分别是计算得到的枝晶尖端稳态生长速度 V_{tip} 和半径 ρ_{tip} 与各向异性系数 ϵ_c 之间的关系. 可见 ϵ_c 增大有利于枝晶生长的进行, 即随着 ϵ_c 的增大生长速度 V_{tip} 不断增加, 尖端半径 ρ_{tip} 逐渐减小. 图 3 (c) 为计算得到的稳定性系数 σ^* 与各向异

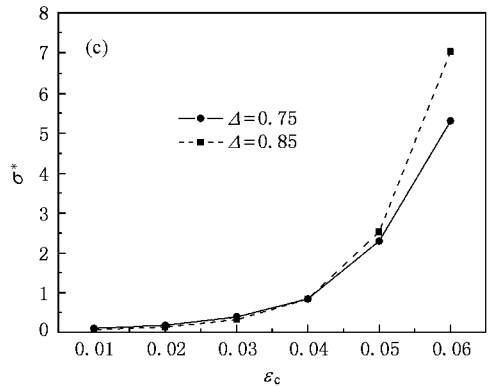
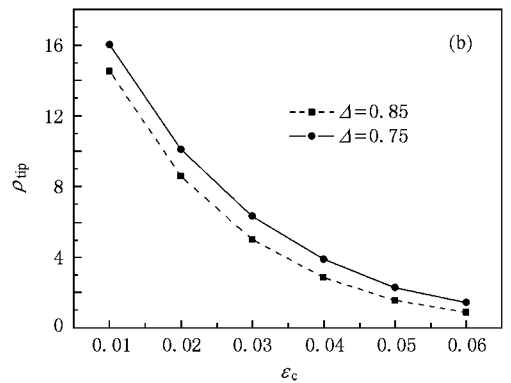
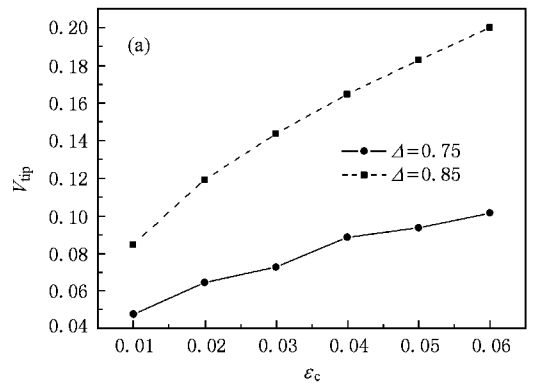


图 3 界面能各向异性对枝晶生长行为的影响 (a) 枝晶尖端生长速度, (b) 枝晶尖端半径, (c) 稳定性系数

性系数 ϵ_c 的关系曲线. 可见在 $\epsilon_c \leq 0.04$ 时不同过冷度所对应的 σ^* 值基本相同, 并且随着 ϵ_c 的增加 σ^* 急剧增加. 使用 $y = ax^b$ 形式的函数对 $0.01 \leq \epsilon_c \leq 0.04$ 范围内计算结果进行回归, 得到 $\Delta = 0.75$ 时 $\sigma^* \propto \epsilon_c^{3.162}$, $\Delta = 0.85$ 时 $\sigma^* \propto \epsilon_c^{3.27}$, 与理论预测存在着较大的差别. 这可能是由于多种原因造成的: 一是可解性理论^[5]适用弱各向异性下的生长过程, 而在模拟过程所采用的各向异性值较高; 二是网格各向异性^[19]也对计算结果具有一定的影响.

4.2. 动力学各向异性作用下的枝晶生长

动力学过冷度是原子从液相穿越液固界面附着到固相所需过冷度,其大小为生长速度 V 与动力学系数 β 的乘积.与界面能类似,界面动力学也具有一定的各向异性.为了单独考察动力学各向异性对枝

晶生长的影响,这里设定界面能为各向同性,而弛豫时间具有四重对称性,即 $W(\theta) = W_0$, $\tau(\theta) = \tau_0 a_k(\theta) = \tau_0(1 + \epsilon_k \cos 4\theta)$,其中 ϵ_k 为动力学各向异性系数.

选取无量纲过冷度 $\Delta = 0.75$,由(3)(4)式分别设定 $\beta = 0.3, 0.6$, $\epsilon_k = 0.03, 0.04, 0.05, 0.06, 0.10$,

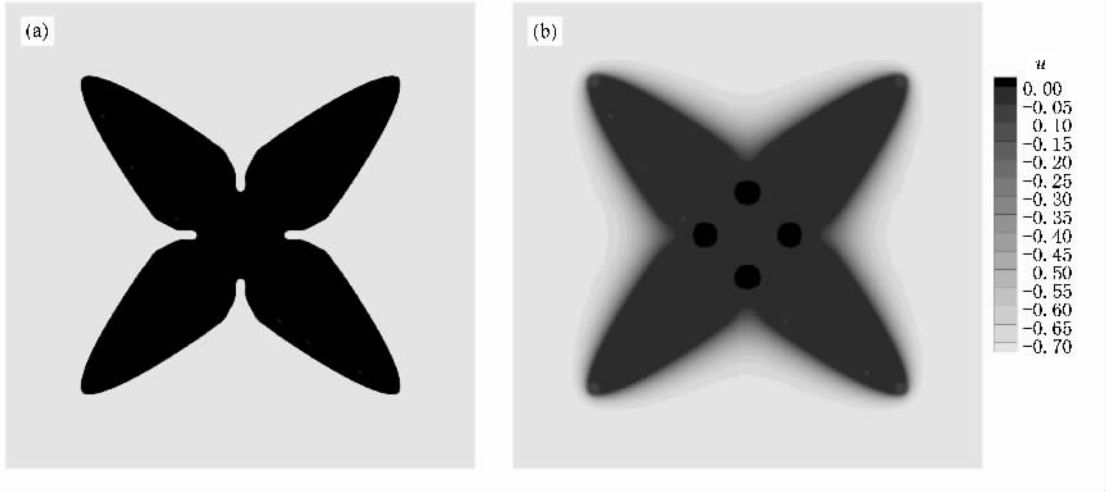


图4 动力学各向异性作用下的枝晶生长 $\Delta = 0.75, \beta = 0.6, \epsilon_k = 0.10$ (a) 枝晶形貌, (b) 温度场

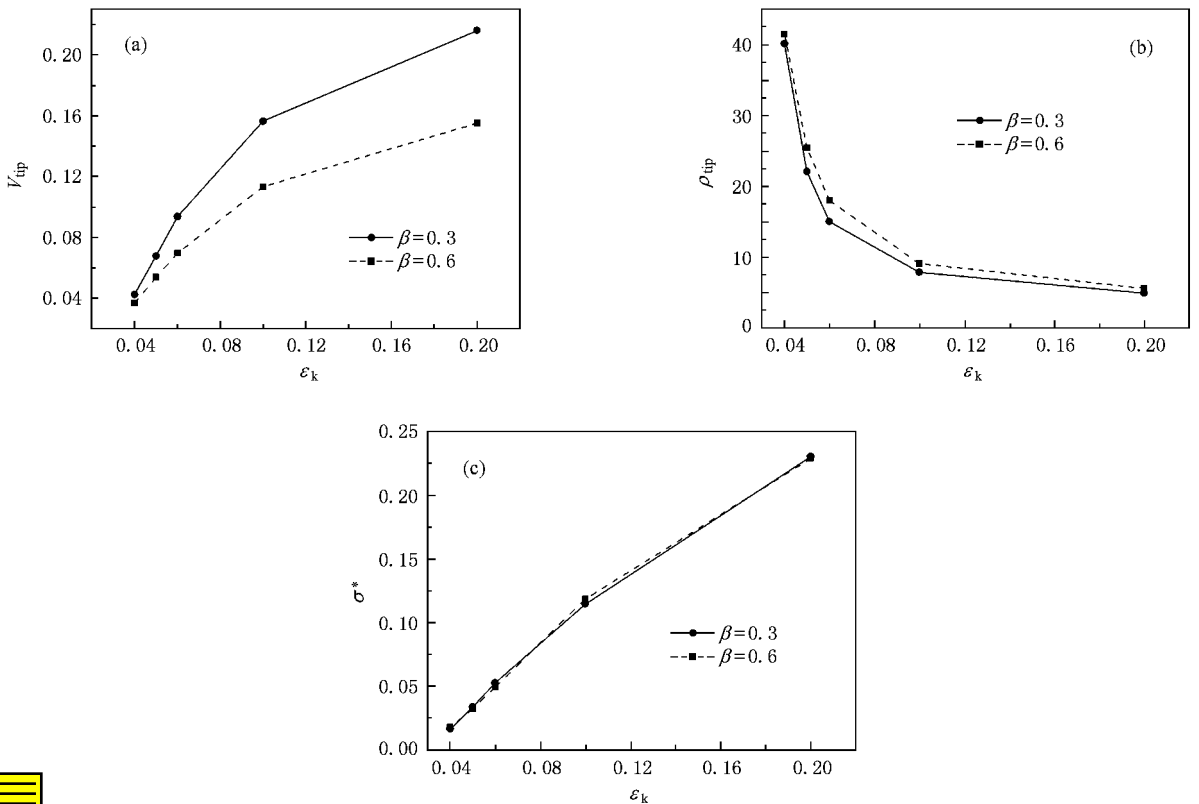


图5 动力学各向异性对枝晶生长行为的影响 $\Delta = 0.75, \beta = 0.3, 0.6$. (a) 枝晶尖端生长速度, (b) 枝晶尖端半径, (c) 稳定性系数

0.20 对动力学各向异性作用下枝晶生长过程进行模拟.由弛豫时间 $\tau(\theta)$ 定义式和(4)式可知动力学系数 β 在 $\theta = \pi/4$ 时取极小值,在相同生长速度下沿该方向生长所需要的动力学过冷度最小,因此固相以枝晶方式沿该方向生长.图4(a)(b)分别为 $\epsilon_k = 0.10$, $\beta = 0.6$, 在计算时间 $10^5 \Delta t$ 时的枝晶形貌以及温度场.

图5为计算给出的枝晶稳态生长速度 V_{tip} 、尖端半径 ρ_{tip} 和稳定性系数 σ^* 与动力学各向异性系数 ϵ_k 的关系,可见增加 ϵ_k 可以促进枝晶生长过程的进行.图5(a)中生长速度 V_{tip} 随着 ϵ_k 的增大而增大,但是增长趋势随 ϵ_k 的增大而减小,其中 $\beta = 0.3$ 的枝晶生长速度大于 $\beta = 0.6$ 的枝晶.图5(b)中,随 ϵ_k 增大枝晶尖端半径 ρ_{tip} 逐渐降低.图5(c)是计算得到的不同动力学系数 β 下稳定性系数 σ^* 与动力学各向异性系数 ϵ_k 的关系曲线,其中当 $\epsilon_k \leq 0.10$ 时稳定性系数 σ^* 随 ϵ_k 的增加而线性增加;同时 $\beta = 0.3$ 和 0.6 对应的两条 $\sigma^* - \epsilon_k$ 关系曲线在所有各向异性取值范围内相互重合,表明此时稳定性系数 σ^* 与 β 无关,只取决于动力学各向异性 ϵ_k .对于 $\epsilon_k = 0.03$,

枝晶在热扩散边界层接近计算区域边界时仍未达到稳定生长状态,所以图中未给出相应数据.

5. 结 论

界面能各向异性与动力学各向异性均可以显著影响自由枝晶生长.随各向异性增加,枝晶尖端稳态生长速度增大而尖端半径降低.在界面能各向异性作用下,当各向异性系数在 $0.01-0.06$ 区间内时固相均以枝晶方式沿 100 方向生长.枝晶生长的稳定性系数随界面能各向异性的增加以幂函数形式增加,其中各向异性系数在 $0.01-0.04$ 范围内不同过冷度所对应的稳定性系数值基本相同.在动力学各向异性作用下,当动力学各向异性系数在 $0.03-0.20$ 范围内时固相以枝晶方式沿 110 方向生长.在 $0.04-0.10$ 区间内稳定性系数随动力学各向异性的增加而线性增加,并且不同动力学系数对应的稳定性系数-各向异性关系曲线基本重合,表明此时稳定性系数只取决于动力学各向异性系数,与动力学系数无关.

- [1] Kurz W, Fisher D J 1998 *Fundamentals of Solidification* (Switzerland: Trans Tech) p45
- [2] Kessler D A, Levine H 1986 *Phys. Rev. B* **33** 7867
- [3] Amar M B, Pomeau Y 1986 *Euro. Phys. Lett.* **2** 307
- [4] Langer J S 1986 *Phys. Rev. A* **33** 435
- [5] Brenner E A 1991 *Adv. Phys.* **40** 53
- [6] Langer J S 1986 *Directions in Condensed Matter* (Singapore: World Scientific) p164
- [7] Caginalp G, Fife P 1986 *Phys. Rev. B* **34** 4940
- [8] Boettinger W J, Warren J A, Karma A 2002 *Annu. Rev. Mater. Res.* **32** 163
- [9] 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 2007 物理学报 **54** 454]
- [10] Li J J, Wang J C, Yang G C 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1514 (in Chinese)[李俊杰、王锦程、杨根仓 2007 物理学报 **56** 1514]
- [11] 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]
- [12] Wang J C, Yang G C, Zhao D W, Zhu Y C 2007 *Chin. Phys.* **16** 805
- [13] Li J J, Wang J C, Yang G C 2008 *Chin. Phys. B* **17** 3516
- [14] Wang J C, Yang G C, Yang Y J, Zhang Y X, Zhu Y C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5290 (in Chinese)[王锦程、杨根仓、杨玉娟、张玉祥、朱耀产 2008 物理学报 **57** 5290]
- [15] Li J J, Wang J C, Yang G C 2007 *Acta Mater.* **55** 825
- [16] Li J J, Wang J C, Yang G C 2007 *J. Cryst. Growth* **309** 65
- [17] Zhang R J, Jing T, Liu B C 2006 *Acta Mater.* **54** 2235
- [18] Cui H B, Guo J J, Su Y Q, Wu S P 2007 *Acta Metall. Sin.* **43** 907 (in Chinese)[崔红保、郭景杰、苏彦庆、吴士平 2007 金属学报 **43** 907]
- [19] Karma A, Rappel W J 1998 *Phys. Rev. E* **57** 4323
- [20] Karma A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 115701
- [21] Provatas N, Goldenfeld N, Dantzig J 1999 *J. Comp. Phys.* **148** 265
- [22] Zhao D W, Yang G C, Wang J C, Zhu Y C, Yu Y M 2006 *Prog. Natl. Sci.* **16** 1009 (in Chinese)[赵达文、杨根仓、王锦程、朱耀产、于艳梅 2006 自然科学进展 **16** 1009]
- [23] Zienkiewicz O C, Zhu J Z 1987 *Int. J. Numer. Meth. Eng.* **24** 337
- [24] Ivantsov G P 1947 *Dokl. Akad. Nauk SSSR* **58** 567
- [25] Almgren R, Dai W S, Hakim V 1999 *Phys. Rev. Lett.* **71** 3461
- [26] Langer J S 1980 *Rev. Mod. Phys.* **52** 1

Phase-field modeling of the effect of liquid-solid interface anisotropies on free dendritic growth^{*}

Zhao Da-Wen Li Jin-Fu[†]

(State Key Laboratory of Metal Matrix Composites , School of Materials Science and Engineering , Shanghai Jiao Tong University , Shanghai 200240 ,China)

(Received 30 November 2008 ; revised manuscript received 10 February 2009)

Abstract

Based on the adaptive finite element method , the phase-field model has been employed to simulate the free dendritic growth process governed by capillary anisotropy or kinetic anisotropy. It is illustrated that the free dendritic growth depends sensitively on the degree of the capillary anisotropy or kinetic anisotropy of the solid-liquid interface. As the anisotropies are enhanced , the dendrite tip growth velocity increases , but the dendrite tip radius decreases . These two kinds of anisotropies have different effects on the free dendritic growth behaviors. Under the capillary anisotropic condition , there is a power law relationship between the stability parameter and the capillary anisotropy parameter. And under the kinetic anisotropic condition , there is a linear relationship between the stability parameter and the capillary anisotropy parameter.

Keywords : capillary anisotropy , kinetic anisotropy , free dendritic growth , phase-field model

PACC : 6150J , 6810C , 6810J , 8130F

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50571068).

[†] Corresponding author. E-mail : jfli@sjtu.edu.cn