

Al-Si 合金枝晶生长相场法模拟影响因素

徐宏¹⁾ 李京社²⁾ 付建勋²⁾ 侯华¹⁾

1) 中北大学材料科学与工程学院, 太原 030051 2) 北京科技大学冶金与生态工程学院, 北京 100083

摘要 采用相场法技术, 确定了噪声、初始晶核半径、各向异性及过冷度等因素对枝晶生长形貌模拟的影响规律. 结果表明: 在保证初始晶核不被熔化的前提下, 初始晶核半径 r_0 的大小不影响模拟结果; 随着界面各向异性系数的增大, 枝晶尖端生长速度以线性方式增大, 而枝晶尖端半径以抛物线方式减小; 过冷度越小, 枝晶的生长越困难, 越不能出现二次枝晶. 相场法模拟影响因素对枝晶生长形貌模拟有重要的影响.

关键词 铝硅合金; 枝晶生长; 相场法; 数值模拟; 影响因素

分类号 TG 244

Influencing factors of Al-Si alloy dendritic growth simulation by phase-field method

XU Hong¹⁾, LI Jing-she²⁾, FU Jian-xun²⁾, HOU Hua¹⁾

1) Materials Science and Engineering Institute, North University of China, Taiyuan 030051, China

2) School of Metallurgical and Ecological Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

ABSTRACT The phase-field method was adopted to investigate the effects of noise, initial crystal nuclei's radius, anisotropy and super-cooling degree on the simulation of dendritic growth in Al-Si alloys. The results show that if the initial crystal nucleus is not melted, its size has nothing to do with the simulation results. With the coefficient of interfacial anisotropic strength increasing, the dendritic tip's growing speed increases linearly, while its radius decreases parabolically. The lower the sub-cooling degree is, the more difficult it is to find secondary dendrites. As a result, the influencing factors in phase-field simulation have important impact on dendritic growth simulation.

KEY WORDS Al-Si alloy; dendritic growth; phase-field method; numerical simulation; influencing factor

1966年, Oldfield^[1]首次提出了在铸件凝固过程宏观模拟的基础上, 将传热方程中的热源项表示成形核率与生长速度的函数的基本思想. 20世纪80年代后, 微观模拟成为铸造学科中的研究热点之一, 国内外学者建立了许多数学模型来模拟金属的微观组织, 主要方法有确定性方法^[2]、随机性方法、蒙特卡罗法^[3]、元胞自动法^[4]和相场法^[5-6].

相场法也称为直接的微观组织模拟, 可以直接模拟微观组织的形成, 通过引入相场变量 Φ 来描述固液界面的形态、曲率以及界面的运动. 若把相场方程与温度场、溶质场、流场及其他外部场耦合, 则可对凝固过程进行真实的模拟. 在模拟计算中, 扰

动、初始晶核半径、空间步长、各向异性及过冷度等因素对枝晶生长形貌模拟都会产生影响. 揭示这些因素对模拟枝晶生长微观组织形貌影响规律, 可以提高模拟精度, 确保模拟的正确性.

1 相场模型

在枝晶生长问题的相场法模拟中采用扩散界面模型, 引入相场变量 Φ , 表示系统时间和空间上的物理状态(液态或固态). 相场对系统中的相具有恒定的值, 例如 $\Phi=1$ 表示固相区, $\Phi=0$ 表示液相区, 在固/液界面上 Φ 的值在 $1\sim 0$ 之间连续变化. 从图1可清楚看出, 液相和固相之间有一个扩散界面

收稿日期: 2008-04-01

作者简介: 徐宏(1971-), 男, 教授, 博士, E-mail: xh725@263.net

层, Φ 在固/液界面的一侧从一个常值逐渐过渡至界面一侧的某一常值. 根据 Φ 的定义, 对应图 1 有:

$$\Phi(x, t) = 1, x \in \Omega_-(t) \quad (1)$$

$$\Phi(x, t) = 0, x \in \Omega_+(t) \quad (2)$$

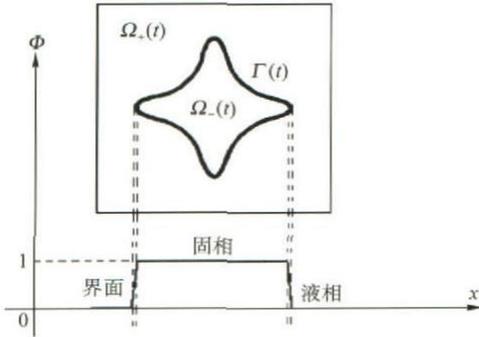


图 1 扩散界面模型

Fig. 1 Diffusion interface model

2 单相二元合金的相场控制方程

相场控制方程可以根据 Ginzburg-Landau 自由能理论^[7]从体系的自由能 F 或熵 S 推导得出, 称为自由能函数法或熵函数法.

2.1 相场控制方程

采用 Karma^[8-9]的相场模型:

$$\begin{aligned} & \tau(\theta) \frac{d\Phi}{dt} = \\ & -\frac{\partial}{\partial x} \left[W^2(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial y} \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[W^2(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial x} \right] - \frac{\partial F(\Phi, \lambda u)}{\partial \Phi} = \\ & \nabla \cdot (W^2(\theta) (\nabla \Phi)) - g'(\Phi) - h'(\Phi) ((1-c)H_A + cH_B) \end{aligned} \quad (3)$$

式中, t 为时间; s ; F 为能量; J ; λ 为表示相场与温度场耦合强度的常量; u 为量纲 1 的温度; $h(\Phi)$ 为考虑枝晶生长时界面释放潜热而构造的函数; J ; 通过定义 $W(\theta) = W_0 a_s(\theta)$ 及 $\tau(\theta) = \tau_0 a_s^2(\theta)$ 引入界面各向异性; W_0 为界面厚度, m ; τ_0 为表征固液界面原子运动时间的变量, s ; $a_s(\theta)$ 为各向异性因子, $a_s(\theta) = 1 + \gamma \cos(k(\theta, \theta_0))$; θ 为枝晶主轴方向与界面法向之间的夹角; θ_0 为枝晶主轴与界面切向的夹角, 文中取 $\theta_0 = 45^\circ$; γ 为各向异性指数; c 为溶质原子分数, %; $g(\Phi) = \Phi^2(1-\Phi)^2$; $H_A = L^A \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_m^A} \right]$; $H_B = L^B \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_m^B} \right]$; L^A 和 L^B 分别为物质 A 和 B 状态时的潜热, J ; T_m^A 和 T_m^B 分别为物质 A 和 B 状态时的熔点, K .

2.2 浓度场控制方程

假定在固相中不存在溶质扩散, 在液相中溶质

分布处处相等, 溶质再分布仅存在于固/液界面内.

$$\begin{aligned} & \frac{dc}{dt} = -\nabla \cdot [M_c h'(\Phi) (H_A - H_B) \nabla \Phi] + \\ & \nabla \cdot \left[\frac{R}{\nu_m c(1-c)} M_c \nabla c \right] - \nabla \cdot [M_c \Gamma(\Phi, T) \nabla T] - \\ & \nabla \cdot [M_c \nabla \cdot (\delta^2 \nabla^2 c)] \end{aligned} \quad (4)$$

式中, $\Gamma(\Phi, T) = \nabla \cdot \frac{2h(\Phi)}{T^2} (L^A - L^B)$; $M_c = \frac{\nu_m}{R} (1-c)c(D_s - h(\Phi)D_l)$; ν_m 为摩尔体积, $m^3 \cdot mol^{-1}$; R 为气体常数; D_s 和 D_l 分别为固相和液相溶质扩散系数.

2.3 温度场控制方程

假定密度、比热容和导热系数为常数, 并且固、液相中的导热系数相同.

$$\begin{aligned} & \frac{\partial T}{\partial t} = D_T \nabla^2 T - \frac{L^A(1-c) + cL^B}{c_p} h'(\Phi) \frac{\partial \Phi}{\partial t} - \\ & \frac{L^A - L^B}{c_p} (1 - h(\Phi)) \frac{\partial c}{\partial t} \end{aligned} \quad (5)$$

式中, D_T 为热扩散率, $D_T = K_T/c_p$; c_p 为比热容, $J \cdot kg^{-1} \cdot ^\circ C^{-1}$; K_T 为热导率, $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$.

3 扰动对枝晶生长模拟的影响

扰动是通过外加噪声实现的. 相场法模拟枝晶生长时存在固有的误差噪声, 通常噪声可引发枝晶的侧向分支. 在界面厚度的取值合适时, 误差噪声并不引发侧向分支, 而是获得光滑的枝晶; 在界面厚度偏大时误差噪声振幅不断增大, 造成界面扰动, 引发侧向分支. 在模拟中通过减小界面厚度取值以消除误差噪声, 而采用外加噪声的方法来引发侧向分支. 本文采用外加噪声的方法是向相场方程引入一个与空间和时间的平均值为零的呈高斯分布的随即变量矩阵 $M_R(r, t)$, 其相应方程变为:

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = -M_\Phi \frac{\delta F}{\delta \Phi} + M_R(r, t) \quad (6)$$

式中, r 为 -1 与 $+1$ 之间的随机数, α 为波动的强度参数. 这种方法可以根据 Φ 的不同而调整波动的强度.

3.1 不加噪声的枝晶形貌

在相同的参数条件下, 由图 2 可见, 不加扰动时, 晶粒生长呈现出由主干组成的枝晶生长方式, 此时其生长是沿着主干方向进行, 光滑且不出现二次枝晶.

3.2 加噪声的枝晶形貌

图 3 可见, 当加上噪声扰动后, 晶粒才生长出发

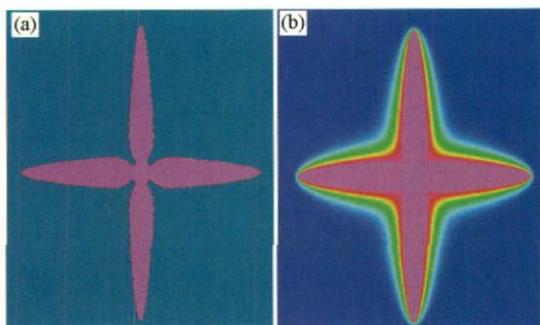


图2 不加噪声获得的(a)相场和(b)温度场

Fig.2 Phase and temperature field without thermal noise: (a) phase field; (b) temperature field

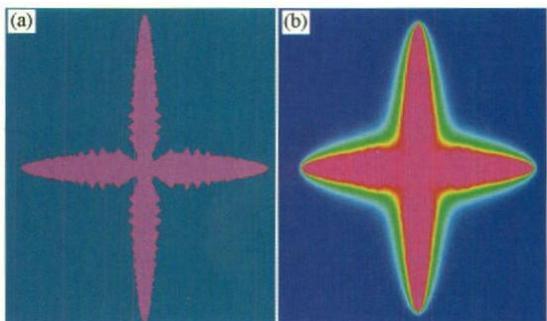


图3 加噪声获得的(a)相场和(b)温度场

Fig.3 Phase and temperature field with thermal noise: (a) phase field; (b) temperature field

达的侧枝. 不加噪声和加噪声两种情况下的一次晶臂枝晶尖端形状很相似, 即两种情况下枝晶尖端曲率半径很相似. 但加噪声后初生枝晶要长一些, 即生长速度要快, 这说明噪声的引入会促进枝晶生长.

4 初始晶核半径对枝晶生长模拟的影响

根据金属学中晶核的形成原理可知, 在过冷的液体中并不是所有的晶核都可稳定存在并能自发地长大, 只有当晶核半径 r_1 的尺寸大于临界晶核半径 r_k 时, 这种晶核才可以自发地长大成为稳定的晶核. 因此, 在模拟计算中, 首先要考虑若初始晶核半径 r_0 取值过小, 初始晶核会在长大之前就被潜热熔化, 这时计算终止. 再者, 要考虑初始晶核半径 r_0 满足大于临界晶核半径 r_k , 保证晶核能继续长大.

相场模型参数 ϵ 是标示界面厚度的主要参数. 经过大量计算发现: 初始晶核半径 r_0 小于 r_k 的晶核被潜热熔化; 初始晶核半径 r_0 在大于 r_k 一定范围内取值时, 模拟得到的枝晶尖端半径、枝晶尖端生长速度和枝晶形貌几乎没有差别(如图4和图5所示). 这表明 r_0 在保证初始晶核不被熔化的前提下, r_0 的大小不影响模拟结果.

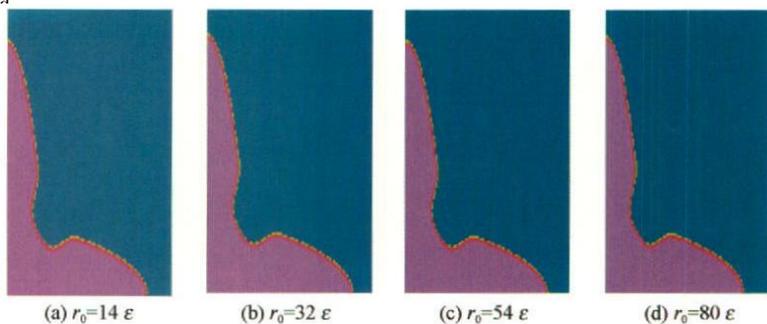


图4 初始晶核半径对枝晶形貌的影响

Fig.4 Influence of initial nucleus radius on dendrite morphology

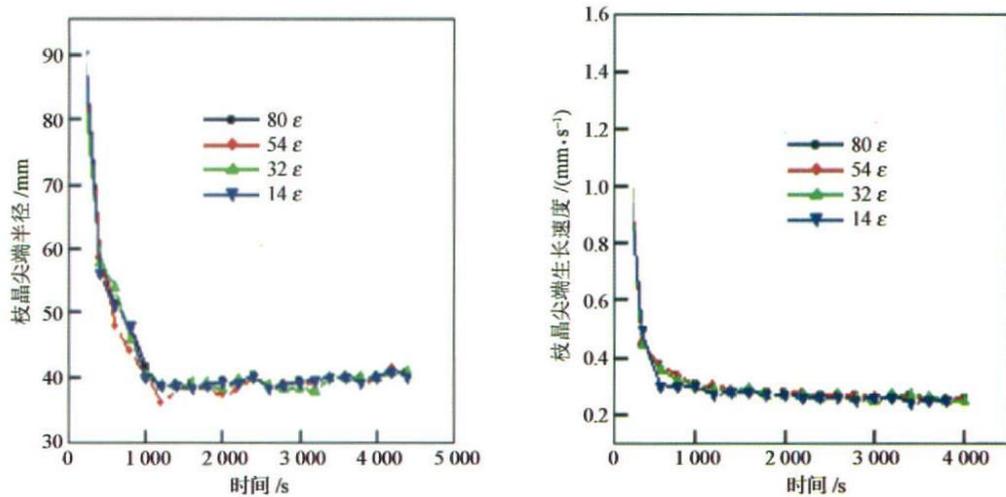


图5 初始晶核半径对枝晶尖端生长的影响

Fig.5 Influence of initial nuclei's radius on the dendrite tip growth

5 过冷度对枝晶生长模拟的影响

根据金属学原理可知,过冷度 ΔT 对等轴晶的形核和生长过程均有重要影响. 为了测试过冷度对晶粒生长模拟的影响,本文针对不同的熔体过冷度,选择相同的计算区域和模拟时间进行模拟. 图6给出了在保证其他参数不变的情况下,顺序改变过冷度的值模拟晶粒生长,即不同过冷度下模拟获得的等轴晶形貌. 由图可以看到:随着凝固温度的降低即过冷度的增加,枝晶主干逐渐变细,枝晶尖端半径减小,生长速率增大. 可见过冷度越小,枝晶的生长越困难. 另外,从图6中还可以看到过冷度对二次枝晶生长的影响. 在较低温度下,枝晶的生长能出现发达的二次枝晶,而且二次晶臂之间的距离也变的很小;在中间温度下虽然出现了二次枝晶,但是二次枝晶并没有很好地生长;而在较高温度下,二次枝晶的生长更困难,在计算时间范围内,二次枝晶几乎不能长大.

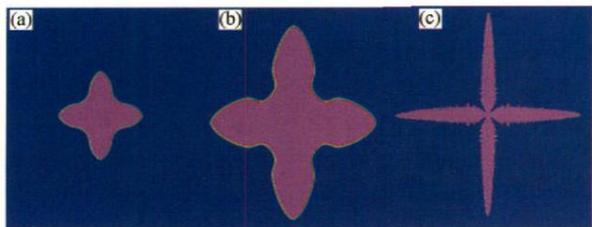


图6 过冷度的影响. (a) $\Delta T=90\text{ K}$; (b) $\Delta T=121\text{ K}$; (c) $\Delta T=243\text{ K}$

Fig. 6 Influence of the degree of supercooling: (a) $\Delta T=90\text{ K}$; (b) $\Delta T=121\text{ K}$; (c) $\Delta T=243\text{ K}$

6 界面各向异性对枝晶生长模拟的影响

金属凝固过程除受到凝固条件的影响外,还受各向异性的制约. 固液界面处的各向异性包括界面能各向异性和界面动力学各向异性^[10]. 在以枝晶形式进行凝固时,界面能各向异性对枝晶形态选择和枝晶生长稳定性产生影响^[11]. 界面动力学各向异性^[12]通过对界面生长速率的影响,对凝固组织形成过程进行作用.

因此,对于枝晶生长模拟的一个完整描述,必须考虑到固液界面处的各向异性. 在本文中,引入界面能各向异性和界面动力学各向异性并进行处理.

界面各向异性系数 γ 表示界面表面张力、界面厚度及界面动力学各向异性的程度. 图7比较了各向异性系数取不同值时对枝晶形貌的影响. 由图7可见:随着各向异性指数的增大,晶粒形貌逐渐向等

轴枝晶转变,主枝不再分叉;同时,枝晶尖端变得越来越尖锐,能真实刻画实际的枝晶生长形貌. 因而,如果各向异性系数为0或者太小,等轴枝晶晶粒形貌就不会产生;同时,随着各向异性系数的增大,在相同条件下枝晶生长得越快. 各向异性系数取值太大大会引发枝晶变异,其原因是各向异性系数增大时,扰动就容易放大,界面前沿就会变得不稳定,晶粒形状就可能变得复杂.

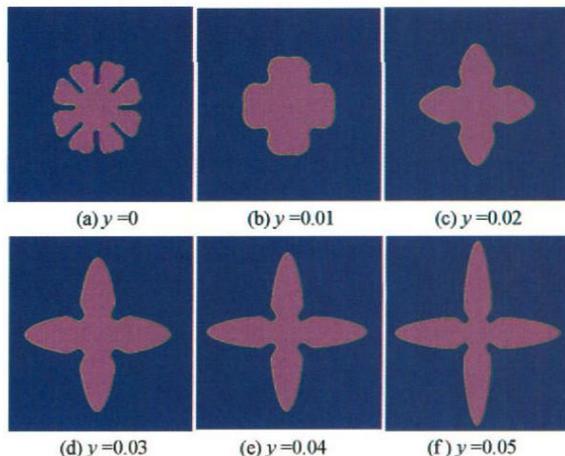


图7 各向异性系数对枝晶形貌的影响

Fig. 7 Influence of anisotropy factor on the morphology of dendrite

7 结论

(1) 在相同的参数条件下,不加扰动时,晶粒生长沿着主干方向进行,光滑且不出现二次枝晶;加上噪声后,晶粒生长过程中长出发达的侧枝.

(2) 初始晶核半径 r_0 过小时晶核被潜热熔化; r_0 在一定范围内取值时,模拟得到的枝晶尖端半径、枝晶尖端生长速度和枝晶形貌几乎没有差别. 这表明在保证初始晶核不被熔化的前提下, r_0 的大小不影响模拟结果.

(3) 随着各向异性指数的增大,晶粒形貌逐渐向等轴枝晶转变,主枝不再分叉;同时,枝晶尖端变得越来越尖锐,能真实反映实际的枝晶生长形貌.

(4) 低过冷度熔体中,侧向分支的生长被抑制,呈现出光滑枝晶形貌;而高过冷度下,侧向分支高度发达.

参考文献

- [1] Oldfield W. A qualitative approach to casting solidification. *ASM Trans.* 1966, 59(2): 945
- [2] Rappaz M, Gandin C A, Tintillier R. Three-dimensional simulation of the grain formation in investment casting. *Metall Mater Trans A*, 1994, 25(3): 629
- [3] Zhu P, Smith R W. Dynamic simulation of crystal growth by

- Monte Carlo method: II. Ingot microstructures. *Acta Metall Mater*, 1992, 40(12): 3369
- [4] Du Q, Li D Z, Li Y Y. Modelling of solidification microstructure based on fully coupling of macro-transport phenomena with cellular automata. *J Mater Sci Technol*, 2000, 16(6): 568
- [5] Nestler B, Danilov D, Galenko P. Crystal growth of pure substances; phase-field simulations in comparison with analytical and experimental results. *J Comput Phys*, 2005, 207: 221
- [6] Collins J B, Levin H. Diffuse interface model of diffusion-limited crystal growth. *Phys Rev B*, 1985, 31(9): 6119
- [7] Wang S L, Sekerka R F, Wheeler A, et al. Thermodynamically consistent phase-field models for solidification. *Phys D*, 1993, 69(10): 189
- [8] Karma A, Pappel W J. Quantitative phase-field modeling of dendritic growth in two and three dimensions. *Phys Rev E*, 1998, 57: 4323
- [9] Karma A, Rappel W J. Numerical simulation of three-dimensional dendritic. *Growth Phys Rev Lett*, 1996, 77(10): 4050
- [10] Ben-Jacob E, Golenfeld N, Langer J S. Boundary-layer model of pattern formation in solidification. *Phys Rev A*, 1984, 29: 330
- [11] Kessler D, Levine H. Theory of the Saffman-Taylor 'finger' pattern. *Phys Rev A*, 1986, 33: 2621
- [12] Ben-Jacob E, Golenfeld N, Langer J S. Boundary-layer model of pattern formation in solidification. *Phys Rev A*, 1984, 29: 330

(上接第 311 页)

- [4] Nishimura T, Katayama H, Noda K, et al. Electrochemical behavior of rust formed on carbon steel in a wet/dry environment containing chloride ions. *Corrosion*, 2000, 56(9): 935
- [5] Brunauer S, Deming L S, Deming W S, et al. On a theory of van der Waals adsorption of gases. *J Am Chem Soc*, 1940, 62: 1723
- [6] Liu L H, Qi H B, Lu Y P, et al. A review on weathering steel research. *Corros Sci Technol Prot*, 2003, 15(2): 86
(刘丽宏, 齐慧滨, 卢燕平, 等. 耐大气腐蚀钢的研究概况. 腐蚀科学与防护技术, 2003, 15(2): 86)
- [7] Dong J H, Chen X H, Han E H, et al. The synergistic inhibition to atmospheric corrosion in Mn-Cu alloying steel // *Second International Conference on Advanced Structural Steels*. Shanghai, 2004: 332
- [8] Chen Y Y, Tzeng H J, Wei L I, et al. Corrosion resistance and mechanical properties of low-alloy steels under atmospheric conditions. *Corros Sci*, 2005, 47(4): 1001
- [9] Kamimura T, Stratmann M. The influence of chromium on the atmospheric corrosion of steel. *Corros Sci*, 2001, 43(3): 429
- [10] Zhang Q C, Wang J J, Wu J S, et al. Effect of ion selective property on protective ability of rust layer formed on weathering steel exposed in the marine atmosphere. *Acta Metall Sin*, 2001, 37(2): 193
(张全成, 王建军, 吴建生, 等. 锈层离子选择性对耐候钢抗海洋性大气腐蚀性能的研究. 金属学报, 2001, 37(2): 193)