

非均匀温度场下枝晶生长状态

秦 勤^{1,2}, 叶陈龙¹, 谢 璐¹, 王 田¹

(1. 北京科技大学 机械工程学院, 北京 100083)

(2. 北京科技大学 顺德研究生院, 广东 佛山 528000)

摘 要: 为了掌握非均匀温度场下微观组织的演变规律, 本工作采用改进的元胞自动机模型, 在完成算法验证的基础上, 对比微观组织在均匀温度场和非均匀温度场下组织演变的异同, 并系统研究微观组织在非均匀温度场中的枝晶形貌、尖端生长速率和域内溶质分布以及多晶组织的演变规律。研究表明: 该模型仿真结果与 CA-FD 模型结果误差范围在 1.4% 以内; 枝晶凝固末端尖端速率在温度均匀场内趋于稳定, 而在非均匀场内表现为持续上升; 固相溶质浓度在非均匀场内随着枝晶臂的延展而增大, 在均匀场内则保持不变。对于非均匀温度场内单枝晶生长, 冷速达到 10 K/s 时, 枝晶臂的长度达到 1030 μm , 较均匀场增加 49.3%, 当冷速达到 30 K/s 时, 枝晶臂长度达到 1460 μm , 同比增加了 111.6%; 冷速的加强使枝晶内部固相溶质浓度增加, 出现更多侧向枝晶臂, 使固/液界面区域溶质出现波动, 呈现不规则分布; 多晶组织在非均匀温度场内平均溶质浓度随冷速的增大而上升, 且域内合金在凝固结束后固相比例随冷速的增加由 45% 增加到 65%, 同时观察到域内溶质富集, 多次枝晶臂的产生和枝晶臂粗化等现象。

关键词: 元胞自动机; 枝晶生长; 非均匀温度场; 冷却速率

中图分类号: TG21; TG113

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2022)10-3707-09

金属的凝固是一个复杂的过程, 其形成的显微组织不仅影响后续的热加工工艺, 也直接影响了金属制品的最终力学性能^[1]。显微组织中树枝晶作为最常见的凝固组织^[2], 对金属性能的影响较大, 准确认识和把握合金凝固微观组织的形成机理、主导因数与控制途径, 从而对金属性能进行有效的预测和控制^[3]。

为了得到良好的合金性能, 许多冶金工作者对金属凝固过程组织的生长展开了实验研究。杨初斌、罗宁和张小联^[4]利用液态金属在高温梯度定向凝固炉中进行冷却, 研究了定向凝固镁合金的枝晶形态及微观特征。Zhang 和 Wang 等人^[5]采用高速 X 射线原位成像和快断层成像技术, 实时研究 Al-Cu 合金在超声凝固过程中枝晶的生长和断裂动态过程。他们应用实验法取得了一定的成果, 但实验法终究是受限的, 有必要使用数值模拟技术开展对枝晶生长的研究, 从而预测枝晶生长并得到良好的金属性能。

近年来, 数值模拟技术已经逐渐成为一种预测金属凝固过程中枝晶组织演变的有效途径^[6]。目前, 凝固微观组织数值模拟方法主要有: 确定性方法、相场法和随机性方法。确定性方法符合合金凝固的物理现象, 但未能考虑枝晶的生长行为。相场法 (PF) 考虑了在流体流动^[7]和重力影响下的枝晶生长^[8], 广泛应

用于二、三维尺度的单枝晶生长。但 PF 法需要消耗大量的计算资源, 限制其在大尺寸金属凝固过程中的应用。由蒙特卡罗 (MC) 和元胞自动机 (CA) 为主的随机性方法不仅适用大型凝固现场, 还考虑了金属凝固过程中的随机现象。MC 法基于界面能最小原理, 最初应用于晶粒再结晶过程, 随后应用于组织生长过程, 但 MC 法无真实的时间概念, 缺乏物理背景。而 CA 模型不仅考虑了枝晶尖端生长动力学, 通过耦合温度场和溶质扩散模型, 有效地描述枝晶的复杂演变过程^[9]。

CA 法最初应用于晶粒的生长和模拟再结晶过程。随后, Spittle 和 Brown^[10]对该方法进行优化, 对熔体凝固过程中的溶质再分配和界面曲率对枝晶尖端的影响加以考虑。在近来的几十年内, 越来越多的材料和冶金工作者投入到数值模拟技术的研究当中, 并且对 CA 方法不断地改进。Gu 和 Lu 等人^[11]建立了基于元胞自动机和工艺模拟过程的三维模型, 模型中同时考虑了晶粒的形核和生长过程, 对铝合金高压铸件的晶粒尺寸进行了预测。辜诚^[12]运用 CA 构建了三维焊接熔池凝固过程的枝晶生长模型, 充分考虑了枝晶尖端的溶质守恒, 并引入了枝晶尖端相关的动力学过冷度, 反应出更加真实的物理现象。Huo 和 Li 等人^[13]基于溶质再分配和生长

收稿日期: 2021-10-08

基金项目: 国家自然科学基金 (51375041)

作者简介: 秦 勤, 男, 1970 年生, 博士, 教授, 北京科技大学机械工程学院, 北京 100083, E-mail: qinqin@me.ustb.edu.cn

各向异性的基础上建立镁合金凝固过程的二维元胞自动机修正模型，通过 AZ91D 镁合金铸件试样的金相实验，该模型可准确预测 AZ91D 镁合金的晶粒尺寸。以上 CA 模型的共同点是枝晶生长方向会受到网格的影响，导致枝晶生长方向和生长速率的差异性。枝晶生长方向和生长速率的差异性问题统称为网格的各向异性^[14]，因此研究者们针对界面尖端生长和界面捕捉算法提出了许多卓越的解决方法。

Chen 和 Xu 等人^[15]建立了二维 CA 模型，通过偏心算法基本消除了网格引起的各向异性，并且对枝晶尖端生长速率在低冷速作用下的预测，证明了其准确性。Zhu 和 Sun^[16,17]通过建立 CA 和格子 Boltzmann 方法(LBM)的耦合模型(CA-LBM)，利用格子 Boltzmann 方法 (LBM) 模拟传热、溶质传输现象并结合虚拟前沿跟踪技术模拟自然枝晶在等温自由对流和强制对流下的生长。Laszlo^[18]研究多尺度不同凝固条件下的定向凝固过程中等轴晶的生长。占小红^[19]建立宏观耦合 CA-FD (cellular automaton-finite difference) 的方法，引入动力学过冷实现二维多取向枝晶生长模拟。陈晋^[20]提出基于溶质扩散的枝晶生长模型，将固液界面尖端锐变方式转化为界面元胞固相分数的渐变方式。王卫领^[21]通过借鉴偏心正方形捕捉算法并加以改进，结合溶质扩散过程实现对尺度晶系生长。Wei 和

Lin 等人^[22]建立各向异性模型，利用有限邻域固体分数 (LNSF) 方法对 camdel 捕捉规则进行修正，并取得了较好的成果。

各国研究人员目前在均匀温度场下对枝晶的生长过程进行研究，但在实际凝固过程中由于冷却配水等因素的影响，会使得熔体内部温度发生变化，从而影响组织的生长。本工作利用改进的元胞自动机 (CA) 模型，研究熔融金属合金在非均匀温度场下的形核生长过程，探究非均匀温度场下组织状态的生长变化并与均匀温度场下的组织状态对比分析。

1 模型验证

CA 模型是一套用于描述离散时间和空间演化的算法，其主要特征是将整个枝晶生长过程看成由一系列的基本元胞互相转化的过程，给每个元胞赋予不同的状态 (固、液与界面态)，并定义元胞状态的转变规则^[23]，实现枝晶的生长。枝晶的生长过程可由图 1 简单描述。

图 1 中， dn 为形核密度， $d(\Delta T)$ 为过冷度增量， $n_{i,max}$ 为最大形核密度， $\Delta T_{i,\sigma}$ 为形核过冷度的标准偏差， $\Delta T_{i,n}$ 为平均形核过冷度，单位为 K，其中 $i=s, i=b$ 分别代表的是熔体内部和表面的形核， ΔT 为时间段， $\delta(\Delta T)$ 为过冷度增量， δn 为形核密度增量， $\Delta T'$ 为积分变量，

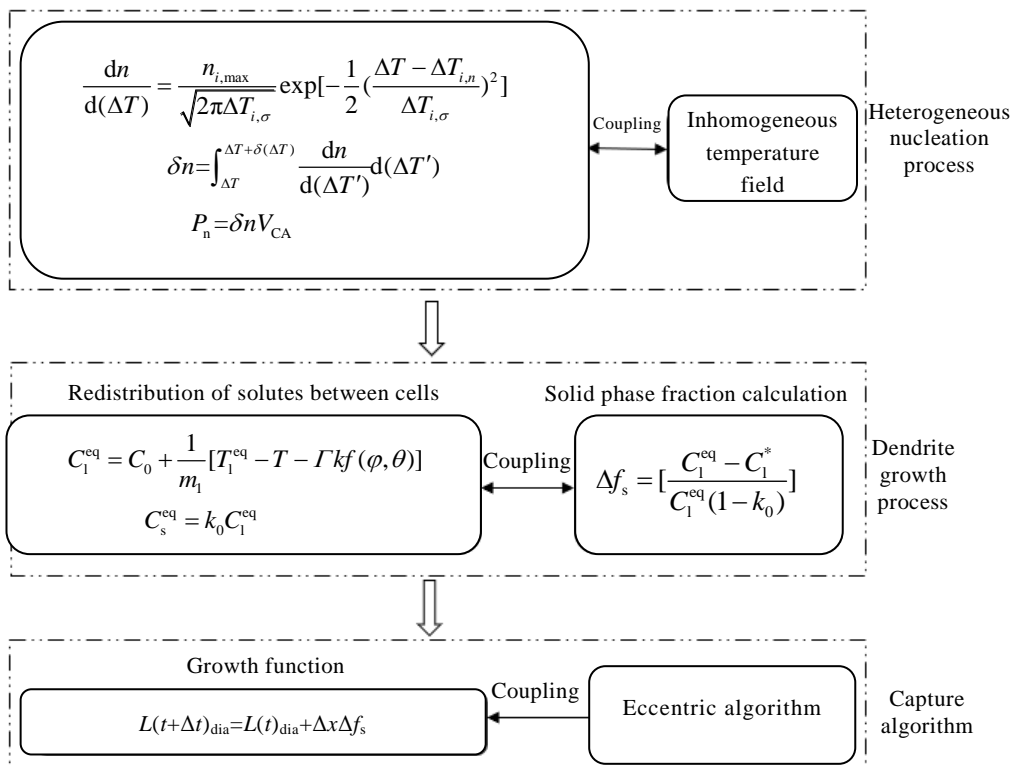


图 1 枝晶形核生长过程

Fig.1 Dendrite nucleation and growth process

P_n 为形核概率, V_{CA} 为元胞的体积, C_1^{eq} 为界面液相平衡浓度, C_0 为初始溶质浓度, T 为局部温度, m_1 为液相线斜率, k 为固液界面的曲率函数, Γ 为 Gibbs-Thomson 系数, k_0 为溶质平衡分配系数, Δf_s 为固相分数增量, $f(\varphi, \theta)$ 为界面能各向异性相关的函数, C_s^{eq} 为界面固相平衡浓度, C_i^* 为界面处的液相成分, $L(t+\Delta t)_{dia}$ 为此刻枝晶臂的总长度, $L(t)_{dia}$ 为上一时刻枝晶臂的长度, Δx 为元胞尺寸, $\Delta x \Delta f_s$ 表示此时间段内枝晶臂生长的长度。

枝晶生长源于非均质形核过程, 为了更接近实际的物理形核现象, 所以本研究利用 Lee 等^[24]提出的连续形核模型描述合金的非均质形核过程。并且固/液界面演化的驱动力取决于界面液相平衡浓度和实际成分浓度之差^[24,25], 并计算出固相分数。形核之后的元胞便由液态转换至界面态开始生长, 随着界面态元胞的长大捕捉周围的元胞, 使其进入界面生长态。本研究使用固/液界面溶质守恒的方法计算枝晶的生长动力学^[26], 但由于 CA 模型网格化的原因在捕捉过程中会受到网格各向异性的影响, 因此需要引入偏心算法使得界面态元胞在捕捉时不再受各向异性的影响。

本节为了说明该 CA 模型的正确性、可行性, 利用 Fe-3%C 合金 (质量分数, 下同) 作为模拟对象, 将模拟结果与 Luo 等人^[26]建立的 CA-FD 耦合模型和经典的 LGK^[27]解析模型进行对比验证, 并且解决了 CA 模型网格各向异性的影响, 实现了偏心计算过程。模拟的表 1 给出的是 Fe-3%C 合金的热物性参数^[15]。

在给定的过冷熔体下实现单枝晶自由生长过程, 定义形核点在模型域中间, 并将其晶体学生长方向设置成 0° (相对于 X 轴), 初始溶质浓度 (质量分数) $C_0=3\%$ 。为了消除枝晶在生长过程中域边界浓度富集对枝晶的影响, 建立一个网格尺寸 Δx 为 $5 \mu m$ (提高计算效率)、并且足够大的模型域 ($1500 \times 1500 \mu m^2$), 以确保枝晶尖端的浓度保持恒定。

从图 2 中可以看出, 在凝固初期枝晶尖端速度迅速下降, 这是因为在凝固初期枝晶生长导致溶质富集在枝晶尖端。由于枝晶的主枝晶臂的生长, 溶质浓度富集在枝晶“颈部”, 导致该区域的溶质浓度含量过高, 因此该区域出现了“颈缩”现象。大约在 0.03 s 时枝

表 1 Fe-3%C 合金物性参数

Symbol	Definition	Value
T/K	Equilibrium liquidus temperature	1692
$D_l/m^2 \cdot s^{-1}$	Liquid diffusion coefficient	5×10^{-10}
$D_s/m^2 \cdot s^{-1}$	Solid phase diffusion coefficient	3.4×10^{-9}
$m_1/K \cdot \%^{-1}$	Liquidus slope	-2.717
$\Gamma/m \cdot K$	Gibbs-Thomson coefficient	2.0×10^{-7}
K_0	Redistribution coefficient	0.098 25
$C_0, \text{ mass fraction}/\%$	Initial composition	3

晶尖端生长速度发生转折, 并逐渐趋于稳定, 该模型凝固尖端生长速度仿真结果与 CA-FD 仿真结果误差范围在 1.4% 以内, 验证了模型的正确性和可行性。同时在该模型的基础上实现了枝晶的偏心生长过程, 消除了传统 CA 模型易受网格各向异性影响的问题, 结果如图 3 所示。从图中可以看出, 本研究所建立的 CA 模型可以模拟出不同晶体学取向的枝晶形貌, 不再受网格各向异性的影响, 并且可以观察到枝晶在生长过程中打破界面平衡状态出现了二次枝晶臂, 对溶质偏析现象也得到了良好的预测。

2 非均匀、均匀温度场枝晶生长对比分析

合金凝固过程中枝晶的生长会受到传热、溶质再分配、固/液界面曲率变化的影响, 其中, 温度的变化

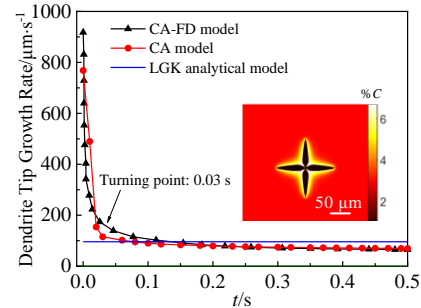


图 2 在恒定过冷 $\Delta T=6 \text{ K}$ 条件下, Fe-3%C 合金枝晶尖端生长速度预测值与凝固时间的关系

Fig.2 Relationship between predicted value of dendrite tip growth rate and solidification time of Fe-3%C alloy at constant undercooling $\Delta T=6 \text{ K}$

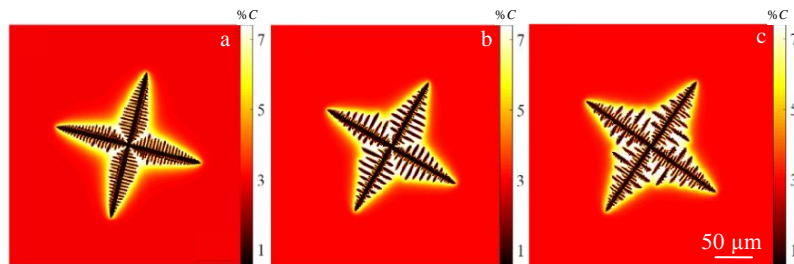


图 3 Fe-3%C 合金单枝晶偏心生长

Fig.3 Decentered growth of single dendrite in Fe-3%C alloy: (a) 15° ; (b) 30° ; and (c) 45°

会使枝晶产生明显的变化。合金在过冷溶体内缓慢凝固，由于不同阶段过冷配水量的不同，会导致熔体内冷却速率的变化，从而使整个熔体处于非均匀温度场下，使得枝晶的凝固速率、形貌等状态与均匀温度场下不同，本节内容将详细描述在不同条件下非均匀温度场与均匀温度场下枝晶生长对比情况。

2.1 均匀温度场下单枝晶的生长模拟

在均匀温度场下，熔体内部施加的初始过冷度不同会导致枝晶生长形貌、溶质浓度变化，针对这些现象使用该CA模型预测单枝晶在不同恒定过冷度情况下，枝晶达到恒定生长状态时的枝晶尖端生长速率和到达凝固终端的枝晶臂长度以及溶质分布情况。从图4a中可以看出，在熔体内给定的过冷度越大，枝晶尖端生长速度越大，并且枝晶臂也会随着增大。过冷度为2 K时，枝晶臂的长度为100 μm，枝晶尖端生长速度为25 μm·s⁻¹。当过冷度达到10 K时，枝晶臂尺寸达到690 μm，尖端生长速度为219 μm·s⁻¹，枝晶臂尺寸比过冷度为2 K情况下增长了5.9倍，尖端生长速率增加高达7.76倍。从中可以看出过冷度的提升对枝晶的生长会产生一定的影响，主要原因是由于过冷度的增大，固液相之间溶质浓度交换的速度增大，迅速推进枝晶的生长，从图中的枝晶形貌也可以看出，枝晶臂也随着过冷度的增大而增大，而且有明显的溶质偏析现象。在凝固过程中，固液相浓度之间不断的相互交换，并且在高过冷条件下，枝晶快速生长，导致在界面区域内的溶质浓度不能及时排放至液相中，从而出现了在枝晶尖端附近溶质突增的现象，如图4b所示。从图中可以看出熔体内初始过冷度越高，固相溶质浓度也会随着上升，枝晶尖端附近的溶质富集程度越大，由于在界面处溶质浓度的富集，导致了固相溶质浓度排放速度缓慢，因此出现了过冷度越高，固相溶质浓度越大的现象。

2.2 非均匀温度场下单枝晶生长模拟

以上研究表明了初始过冷度对枝晶生长状态具有一定的影响，因此为了进一步研究非均匀温度场下枝晶的生长状态与均匀温度场下的不同之处，设置熔体内初始过冷度为10 K、晶体取向为0°方向条件下，冷却速率为20 K·s⁻¹的枝晶生长状态图。从图5a可以看出，在初始时刻，枝晶尖端生长速率迅速下降，当到达时间点0.07 s时，速度达到最低点，在此时间点时候速度逐渐上升。这是因为在此时间点枝晶到达了稳定的生长状态，然而由于冷却速率的影响导致模型域内温度的持续下降，由于枝晶的生长受温度的影响最为明显，因此枝晶尖端速度逐渐提升。同时从图5a中的枝晶形貌也可以看出，枝晶的形貌发生了明显的变化，出现了大量的二次枝晶臂。从图5b图中沿着枝晶中心线上溶质浓度分布情况可知，与均匀温度场不同的是，非均匀温度场下主枝晶臂方向上固相溶质浓度随着枝晶臂的生长而增大，同时在枝晶臂尖端部分也会出现溶质突增的现象。

2.3 非均匀、均匀温度场下单枝晶生长状态对比分析

在凝固过程当中由于外界条件不断的变化会使得过冷熔体处于非均匀温度场下，该过程将会对枝晶的生长过程产生一定的影响，进而会改变合金最终的微观组织结构。因此，为了探究枝晶的生长状态在均匀与非均匀温度场下的区别，需要将合金在非均匀温度场下的凝固过程与均匀温度场进行对比分析。

图6所示的是过冷度为10 K、晶体取向为0°方向上，均匀温度场与冷却速率为20 K·s⁻¹的非均匀温度场内单枝晶的生长状态对比。从图中可以看出，在初始时刻均匀温度场下的枝晶尖端生长速率为786 μm·s⁻¹，而非均匀温度场的枝晶尖端速率为952 μm·s⁻¹，略高于均匀温度场下的尖端生长速率。在此之后，尖端生

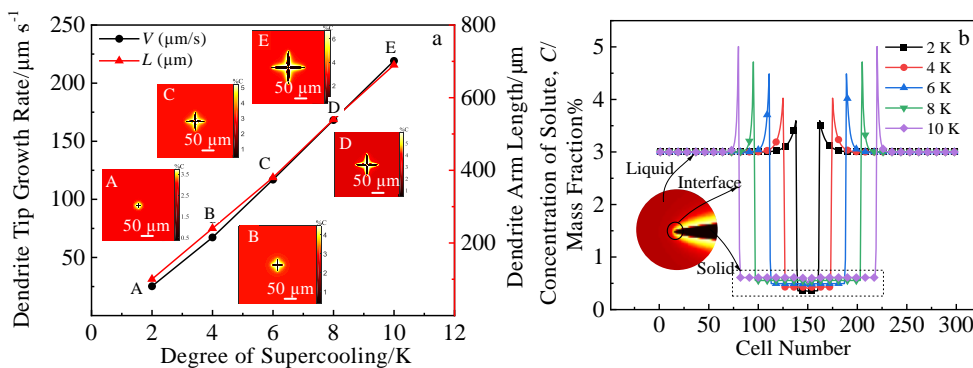


图 4 Fe-3% C 合金在不同过冷度下的枝晶生长状态

Fig.4 Dendrite growth states of Fe-3% C alloy at different undercooling degrees: (a) dendrite tip growth rate and dendrite arm length change; (b) solute concentration distribution along the dendrite center line

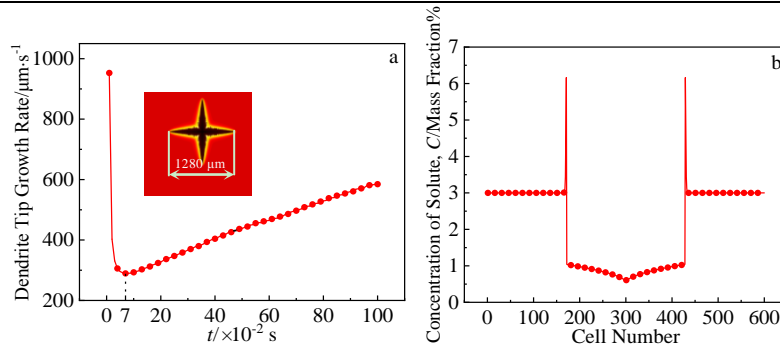


图 5 Fe-3%C 合金在过冷度 10 K 条件下，冷却速度为 20 K·s⁻¹ 的枝晶生长状态

Fig.5 Dendrite growth state of Fe-3%C alloy at a cooling rate of 20 K·s⁻¹ and supercooling degree of 10 K: (a) dendrite tip growth rate and dendrite morphology; (b) solute concentration distribution along the dendrite central line

长速率迅速下降，在时间点为 0.07 s 时两者生长速率均发生改变，在均匀温度场下的枝晶尖端生长速率趋于平缓，最终基本保持在 70 μm·s⁻¹ 稳定生长，而非均匀温度场模型由于冷却速率的作用，在该时间点达到最低生长速率 290 μm·s⁻¹ 之后尖端速率开始逐渐生长，基本呈现线性增长。

图 6 中 A 为均匀温度场下的枝晶形貌，图 6 中 B 为非均匀温度场下的枝晶形貌。从图 6 中 A 可见，均匀温度场下枝晶生长缓慢，在凝固结束时枝晶臂的长度仅为 690 μm，而且没有明显的侧枝生长，并且在枝晶颈部发生了明显的颈缩现象。从图 6 中 B 可以看出，在冷却速率的作用下，使得枝晶生长速度加快，在凝固结束时枝晶臂长度达到 1280 μm，比均匀温度场下的枝晶臂长度增加了 85.5%。还可以观察到在枝晶颈部的颈缩程度不是很强，并且在颈部周围和主枝晶臂上能明显观察到侧枝的产生。

图 7 是凝固结束后溶质浓度在不同温度场下的分布情况。从图中可见，在均匀温度场下，枝晶凝固部分的溶质浓度基本保持在相对稳定的水平状态，而在非均匀温度场下，固相部分溶质浓度会随着枝晶臂的

生长而逐渐增大。在凝固结束时，由于枝晶在生长过程中将固相部分溶质浓度排至周围的空间中，导致枝晶尖端会出现溶质浓度富集的现象。从图中可以看出，非均匀温度场枝晶尖端溶质富集程度会较大于均匀温度场，这是由于冷速的作用下，枝晶生长速度变快，固/液相溶质之间交换速率变快，导致非均匀温度场下的溶质富集程度更大。

3 非均匀温度场下枝晶生长状态分析

通过以上的对比分析发现，非均匀温度场下的枝晶生长形貌和尖端速率以及固相、液相和界面相溶质浓度分布情况都与均匀温度场下的枝晶生长状态具有显著的区别。因此，在此基础上对非均匀温度场下单枝晶生长状态开展研究，并进一步探究非均匀温度场下对多枝晶生长状态的影响。

3.1 非均匀温度场对单枝晶生长状态影响

由上文可知，从枝晶的形貌变化、溶质分布情况和枝晶尖端生长速率等因数可以看出，非均匀温度场与均匀温度场下的单枝晶生长状态具有相同点和不同点。为了进一步研究非均匀温度场下单枝晶生长状态

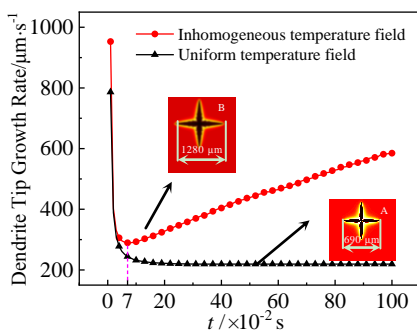


图 6 均匀和非均匀温度场的枝晶生长状态对比

Fig.6 Comparison of dendrite growth states in uniform and inhomogeneous temperature fields

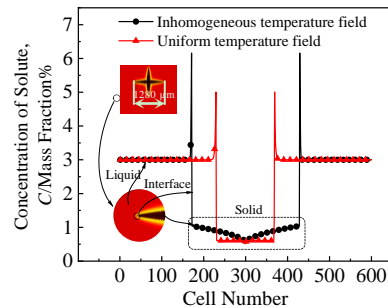


图 7 均匀温度场与非均匀温度场下沿中心线上溶质分布情况

Fig.7 Solute concentration distribution in uniform and inhomogeneous temperature fields on the dendritic central line

变化, 使用 CA 模型模拟在恒定过冷溶体内, 施加不同的冷却速率, 研究枝晶的尖端速度和溶质变化情况。模型域初始溶质浓度 $C_0=3\%$, 给定初始过冷度 10 K 作为初始条件, 模拟 Fe-3% C 合金枝晶初始生长角为 0° 方向上, 研究在恒定过冷熔体中冷却速率变化对枝晶生长所产生的影响。

图 8 是 Fe-3% C 合金在初始过冷度为 10 K 的过冷溶体中, 研究在不同冷却速率下枝晶尖端生长速率变化情况。从图中可以看出, 在初始时刻, 不同冷却速率下的枝晶尖端速率基本接近于 $950 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 在此之后枝晶尖端生长速率迅速降低。这是因为在形核之后枝晶开始生长, 整个模型域的温度开始变化, 界面元胞将其内部的液相浓度排出至周围的液相元胞当中, 导致枝晶周围的液相浓度升高, 枝晶生长缓慢, 因此枝晶尖端速率迅速下降。当时间点到达 0.07 s 时, 不同冷却速率下的枝晶尖端生长速度到达最低点 $300 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右之后开始缓慢上升, 与均匀温度场下尖端速率发生改变的时间点一致, 这是由于冷却速率的存在使得整个模型域的温度在持续下降, 从而会使得枝晶生长受到影响。

冷却速率越大, 导致枝晶生长速度变快, 因此枝晶的形貌也受到了相对应的影响, 图 9 所描述的是在不同冷却速率下枝晶的形貌变化。从图中可以看出, 枝晶臂长度的变化是随着冷却速率的升高而增大, 在冷却速率为 $10 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$ 时枝晶臂尺寸就达到 $1030 \mu\text{m}$, 比均匀温度场下增长了 49.3%, 在此之后枝晶臂长度变化近乎呈现线性变化的趋势, 当冷却速率达到 $30 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$ 时枝晶臂尺寸达到了 $1460 \mu\text{m}$, 同比增加了 111.6%。冷却速率的增大对枝晶的形貌也产生了一定的影响, 从图 9 中 A~E 可以观察到, 枝晶臂随着冷速的增大同时出现粗化现象, 枝晶颈部还是有一定的颈缩现象, 在主枝晶臂两侧明显能观察到越来越多的侧枝出现。

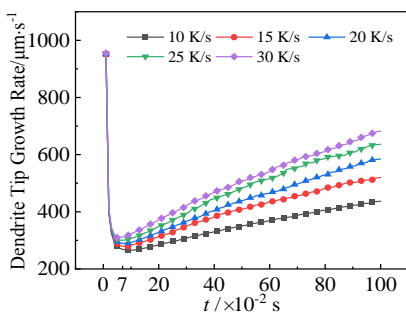


图 8 恒定过冷度 10 K 下, 时间步长为 1 s, 不同的冷却速率下的枝晶尖端速度

Fig.8 Dendrite tip growth rate at different cooling rates and at a constant undercooling degree of 10 K and a time step of 1 s

冷却速率的增加, 不仅使枝晶生长速度变快, 同样让枝晶的侧枝也迅速生长, 因此在一定程度上对枝晶的生长形貌以及溶质成分再分配也产生了一定的影响。图 10 所描述的是不同冷却速率下枝晶尖端溶质浓度沿中心线的分布, 从图中可以看出固相溶质浓度还是保持在较低的状态, 且高冷速下的固相溶质浓度增长速度会高于低冷速状态下, 但都缓慢上升。当元胞向界面元胞转换时, 溶质浓度急剧上升到一个较大值, 但并不会随着冷却速度的增大而增大, 这是因为冷却速率越快导致枝晶生长活跃程度变大, 打破界面处的固液守恒状态, 产生了二次枝晶臂。因此出现界面处溶质浓度分布不均的情况。

在均匀温度场下, 枝晶的生长依靠溶质扩散的方式进行, 固液之间溶质相对守恒, 且枝晶生长缓慢。而在非均匀温度场下受到不同冷却速率的影响时, 枝晶形貌发生了显著的改变, 出现了枝晶尖端生长速率的变化、枝晶臂长大、粗化等现象, 因此表明非均匀温度场下枝晶形貌、状态等因数与均匀温度场的枝晶生长状态具有明显的区别。

3.2 不同冷却速率对多枝晶生长状态影响

合金在过冷溶体内凝固生长, 其形核以及形核后的枝晶晶体取向都是随机的。本节模拟多枝晶在均匀与非均匀温度场下的凝固生长过程, 结合偏心算法和高斯连续随机形核模型, 建立尺寸为 $5 \mu\text{m}$ 元胞, 大小为 $5000 \mu\text{m}\times 5000 \mu\text{m}$ 的模型域, 对 Fe-3% C 合金实现在均匀温度场与非均匀温度场下的形核生长过程。

在初始时刻, 整个模型域均为熔融状态, 初始熔体温度为液相线温度, 图 11 为 Fe-3% C 合金在过冷度为 10 K 情况下, 整个形核过程为 0.4 s 内的多枝晶随机形核过程。由晶系图 11e~11h 中可以看出, 在等温熔体中, 随着时间的推移, 新的形核点不断出现, 形成新的枝晶, 并且形成晶界, 进而使得整个模型域的溶

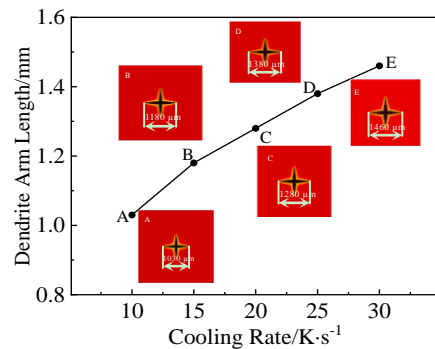


图 9 恒定过冷度 10 K, 不同冷却速率下枝晶形貌、尺寸变化

Fig.9 Morphology and size of dendrites changed under different cooling rates at a constant undercooling degree of 10 K

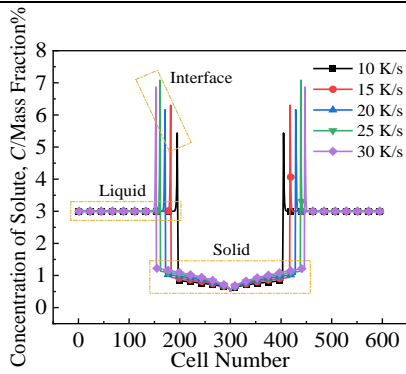


图 10 Fe-3%C 合金在过冷度为 10 K，不同冷却速率条件下沿中心线上溶质浓度分布

Fig.10 Solute concentration distribution along the center line of Fe-3%C alloy at different cooling rates and undercooling degree of 10 K

质浓度升高，在 0.1 s 之前各形核枝晶几乎沿着各自的晶体学取向方向生长，呈现出四重对称的效果，由于凝固前期枝晶周围溶质浓度的变化较小并没有影响到枝晶的生长。而在 0.1 s 之后，由于形核个数的增多和枝晶在生长过程中将其内部的溶质成分排到周围的元胞当中，导致周围溶质浓度逐渐升高，从而抑制了枝晶的生长，打破了枝晶四重对称状态，使得枝晶沿着溶质浓度小的方向生长。从图 11a~11d 可以看出，随着凝固过程的进行，溶质浓度逐渐富集于枝晶之间的液相区域，各枝晶的生长受到了充分的抑制，此时，各枝晶的主枝晶臂、二级枝晶臂和三级枝晶臂开始逐

渐粗化，晶界之间的液相区域逐渐缩小。

等温温度场中的枝晶生长只是靠溶质扩散过程进行形核生长，元胞之间的溶质扩散十分缓慢，所以枝晶的生长速度会在初始时刻迅速下降最后处于稳定状态，随着液相区域溶质浓度的增加，枝晶内部溶质难以扩散，进而导致枝晶生长速度进一步变得更加缓慢，从而会在熔体内部形成液相区域，无法完全凝固。

图 12 是在过冷熔体下，时间历程为 0.1 s，不同冷却速率下枝晶的生长状态。由于是高斯随机形核过程，所以每个模型域当中的形核点有所不同。但是从图中可以看出，随着冷却速率增大，在整个模型域内形核数目逐渐增多，枝晶生长速度加快并且固相部分所占比例逐渐增多，液相中的溶质成分浓度所占比例也逐渐升高。

图 13 是由图 11a 与图 12 在相同的时间历程下，由等温温度场与非均匀温度场不同冷却速率下枝晶在凝固终端固相部分所占比例大小与溶质成分在模型域内的分布情况。从图 11a 可以看出，在均匀温度场下枝晶形核数目较少，而且生长缓慢。从图 13 可见，此时刻 (0.1 s) 下的均匀温度场内固相部分所占比例为 29.1%，整个模型域大部分处于熔融状态。在非均匀温度场下，当冷却速度为 10 K·s⁻¹时，固相部分比例就占据了整个模型域的 45%，比在等温温度场下增加了 15.9%，而后随着冷却速率增加，固相部分所占比例也逐渐增加。当冷却达到 30 K·s⁻¹时，固相部分所占比例为 65%，比冷却速度为 10 K·s⁻¹时增加了 20%，比

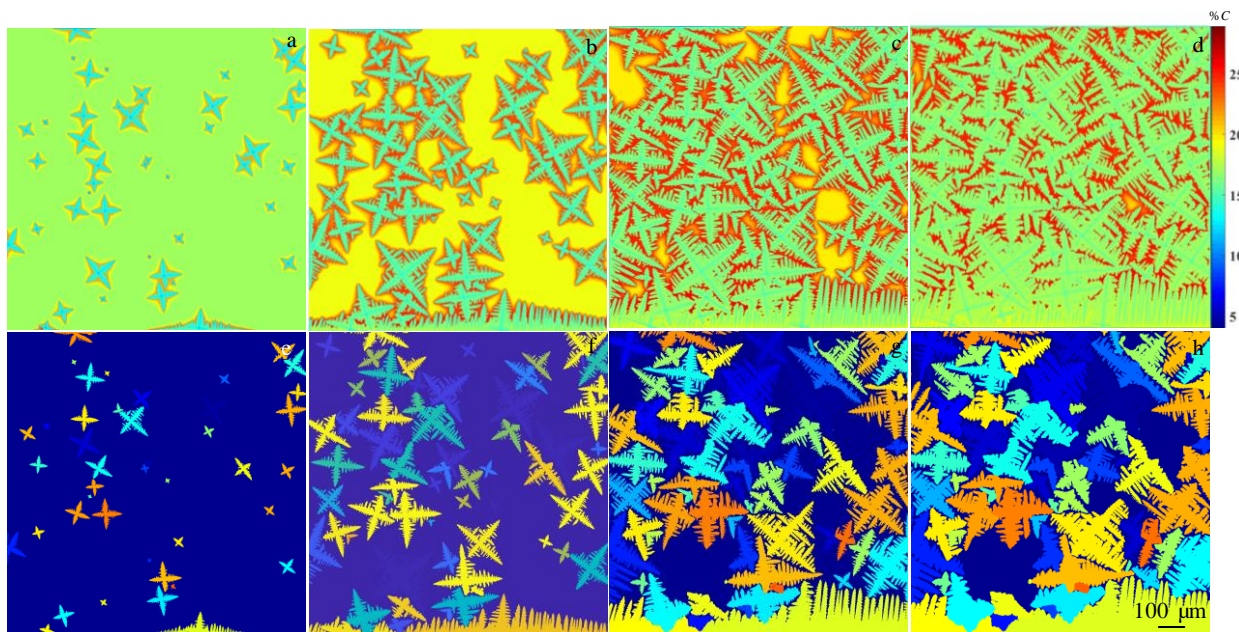


图 11 模拟 Fe-3%C 合金在均匀温度场下多枝晶形核生长过程

Fig.11 Solute field concentration (a~d), and crystal system diagram (e~h) for simulation of multi-dendritic nucleation growth of Fe-C alloy under uniform temperature field: (a, e) time 0.1 s, (b, f) time 0.2 s, (c, g) time 0.3 s, and (d, h) time 0.4 s

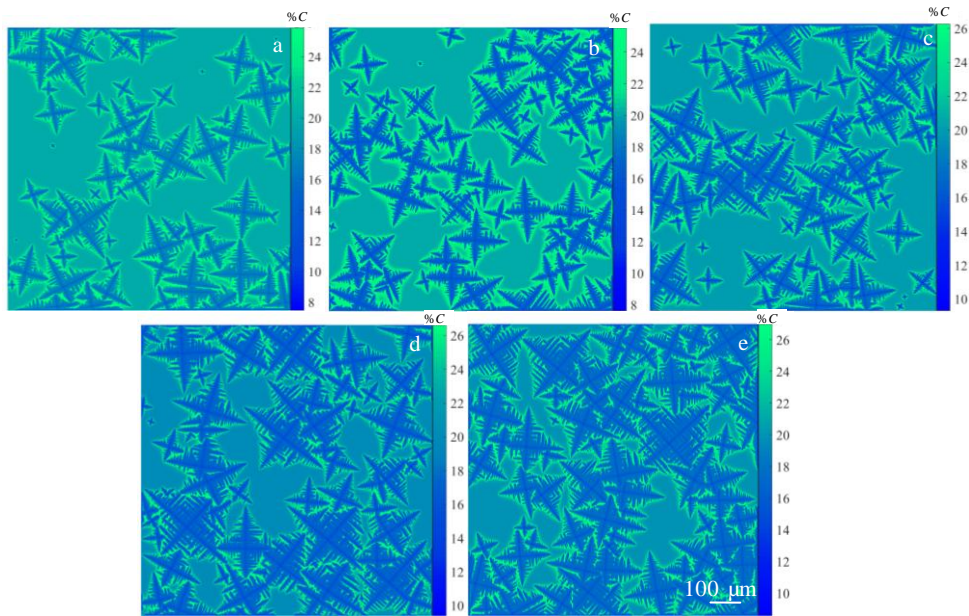


图 12 过冷度 10 K 下不同冷却速率多枝晶生长状态

Fig.12 Growth state of dendrites at different cooling rates under the undercooling degree of 10 K: (a) 10 K/s, (b) 15 K/s, (c) 20 K/s, (d) 25 K/s, and (e) 30 K/s

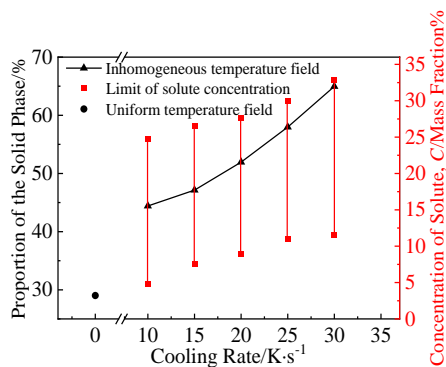


图 13 不同温度条件下模型域内固相部分所占比例与溶质浓度极值

Fig.13 Proportion of solid phase and the extreme value of solute concentration in the model domain under different temperature conditions

均匀温度场提升了 35.9%。从图 12e 可见，此时溶体内部新的形核点已经逐渐减少了，并且由于溶质浓度的升高，枝晶之间的相互制约，使得初始形核的枝晶出现了多次枝晶臂，枝晶臂开始逐渐粗化。从图中观察不同冷速下溶质浓度分布情况可以得到，固相溶质浓度（极小值）和液相溶质浓度（极大值）在冷却速率的作用下逐渐升高，这是因为枝晶数目的增多，冷却速率的增加导致了固/液相溶质浓度交换速率加快，从而使得固相、液相溶质浓度增大。

4 结 论

1) 非均匀温度场下，枝晶的形貌会由于冷速施

加而产生不同的变化。对于单枝晶，在冷却速率为 10 K·s⁻¹ 时，枝晶臂尺寸达到 1030 μm，比同等时间步下的均匀温度场枝晶臂尺寸 690 μm 增长了 49.3%，当冷却速率为 30 K·s⁻¹ 时，枝晶臂尺寸达到 1460 μm，同比增长了 111.6%。随着枝晶臂的生长，高冷速状态下的固相溶质浓度上升速度略高于低冷速状态，并且在界面生长处出现溶质浓度分布不均的现象。

2) 在非均匀温度场研究多枝晶生长过程，冷却速率的增加会引起形核数目的增多，加快枝晶的生长速度，从而使得枝晶所存在的固相部分比例也随之升高。凝固时间为 0.1 s 时，等温温度场下合金凝固区域在模型域内的占比为 29.1%，在同等条件下的非均匀温度场内，冷却速率为 10 K·s⁻¹ 时，合金凝固区域占比达到 45%，比均匀温度场提升了 15.9%，当冷速达到 30 K·s⁻¹ 时，合金凝固区域占比高达 65%，比均匀温度场提升了 35.9%，与此同时模型域内观察到个别枝晶出现了多次枝晶臂和枝晶臂粗化等现象。

参考文献 References

[1] Chen Jin(陈晋), Zhu Mingfang(朱明芳), Sun Guoxiong(孙国雄). *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2005, 41(8): 799

[2] Zhang Yunpeng(张云鹏), Lin Xin(林鑫), Wei Lei(魏雷) et al. *Acta Physica Sinica*(物理学报)[J], 2013, 62(17): 509

[3] Wang Tongmin(王同敏), Wei Jingjing(魏晶晶), Wang Xudong(王旭东) et al. *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2018, 54(2): 193

- [4] Yang Chubin(杨初斌), Luo Ning(罗 宁), Zhang Xiaolian(张小联) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(10): 3028
- [5] Zhang Zhiguo, Wang Chuangnan, Koe Billy *et al. Acta Materialia*[J], 2021, 209: 116 796
- [6] Chen Rui(陈 瑞), Xu Qingyan(许庆彦), Liu Baicheng(柳百成). *Acta Physica Sinica*(物理学报)[J], 2014, 63(18): 449
- [7] Lu Y, Beckermann C, Ramirez J C. *Journal of Crystal Growth*[J], 2005, 280(1): 320
- [8] Viardin A, Zollinger J, Sturz L *et al. Computational Materials Science*[J], 2020, 172: 109 358
- [9] Shi Yufeng(石玉峰), Xu Qingyan(许庆彦), Liu Baicheng(柳百成). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2013, 42(4): 700
- [10] Spittle J A, Brown S G R. *Acta Metallurgica et Materialia*[J], 1994, 42(6): 1811
- [11] Gu Cheng, Lu Yan, Cinkilic Emre *et al. Computational Materials Science*[J], 2019, 161: 64
- [12] Gu Cheng(辜 诚). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Nanjing: Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, 2017
- [13] Huo Liang, Li Bin, Shi Yufeng *et al. Tsinghua Science & Technology*[J], 2009, 14(3): 307
- [14] Beltran-Sanchez L, Stefanescu D. *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2004, 35(8): 2471
- [15] Cheng Rui, Xu Qingyan, Liu Baicheng. *Journal of Materials Science & Technology*[J], 2014, 30(12): 1311
- [16] Sun D K, Zhu M F, Pan S Y *et al. Acta Materialia*[J], 2009, 57(6): 1755
- [17] Sun D K, Zhu M F, Pan S Y *et al. Computers and Mathematics with Applications*[J], 2010, 61(12): 3585
- [18] Laszlo Sturz, Angelos Theofilatos. *Acta Materialia*[J], 2016, 117: 356
- [19] Zhan Xiaohong(占小红). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2008
- [20] Chen Jin(陈 晋). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Nanjing: Southeast University, 2005
- [21] Wang Weiling(王卫领). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Shenyang: Northeastern University, 2017
- [22] Wei Lei, Lin Xin, Wang Meng *et al. Materials Discovery*[J], 2016, 3: 17
- [23] Zhu Mingfang(朱明芳), Tang Qianyu(汤倩玉), Zhang Qingyu(张庆宇). *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2016, 52(10): 1297
- [24] Lee Wonjoo, Jeong Yuhyeong, Lee Jae-Wook *et al. J Mater Sci Technol*[J], 2020, 49(14): 15
- [25] Zhang Yi, Zhang Jing. *Additive Manufacturing*[J], 2019, 28: 750
- [26] Luo S, Zhu M Y. *Computational Materials Science*[J], 2013, 71: 10
- [27] Eshraghi M, Felicelli S D, Jelinek B. *J Cryst Growth*[J], 2012, 354(1): 129

Dendrite Growth State Under Non-uniform Temperature Field

Qin Qin^{1,2}, Ye Chenlong¹, Xie Lu¹, Wang Tian¹

(1. School of Mechanical Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

(2. Shunde Graduate School, University of Science and Technology Beijing, Foshan 528000, China)

Abstract: In order to grasp the evolution of microstructure under non-uniform temperature field, this work adopted a modified meta-cellular automata model to compare the similarities and differences of microstructure evolution under uniform and non-uniform temperature fields on the basis of completing the algorithm verification, and systematically studied the evolution of dendrite morphology, tip growth rate and solute distribution in the domain as well as the evolution of polycrystalline structure in non-uniform temperature field. The results show that the simulation results of the model is within 1.4% of the error range of the CA-FD mode. The tip rate at the solidification end of the dendrite tends to be stable in the uniform temperature field, while it shows a continuous increase in the non-uniform field. The solid phase solute concentration increases with the extension of the dendrite arm in the non-uniform field, but remains constant in the uniform field. For single dendrite growth in the non-uniform temperature field, the length of dendrite arms reaches 1030 μm when the cooling rate reaches 10 K/s, an increase of 49.3% compared to the uniform field. And the length of dendrite arms reaches 1460 μm when the cooling rate reaches 30 K/s, an increase of 111.6%. The strengthening of the cooling rate increases the solid-phase solute concentration inside the dendrite, and more lateral dendrite arms appear, causing the fluctuation of the solute at the solid/liquid interface, showing an irregular distribution. The average solute concentration in the non-uniform temperature field of the polycrystalline structure increases with the increase of the cooling rate, and the proportion of solid phase in the domain increases from 45% to 65% at the end of solidification with the increase of the cooling rate. While solute enrichment in the domain, multiple dendrite arm generation and dendrite arm coarsening are observed.

Key words: cellular automata; dendrite growth; non-uniform temperature field; cooling rate

Corresponding author: Xie Lu, Ph. D., Associate Professor, School of Mechanical Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, P. R. China, E-mail: xielu@ustb.edu.cn