

Al-Si 合金枝晶形貌的三维相场模拟

张 冰, 赵宇宏, 王 鸿, 陈伟鹏, 侯 华

(中北大学, 山西 太原 030051)

摘 要: 基于包含固相扩散系数的 Karma 薄界面相场模型, 采用三维自适应网格划分法, 研究了界面宽度、热噪声幅值对 Al-Si 合金过冷熔体中枝晶生长行为的影响。模拟结果表明: 随着界面宽度的增加, 枝晶形貌的复杂度下降, 枝晶尖端生长速度下降, 尖端液相处溶质的富集程度下降; 随着热噪声幅值的增加, 枝晶尖端变化较小, 位于枝晶主干两侧的二次枝晶的数量和不对称度增加。

关键词: 相场法; 枝晶生长; 三维自适应网格; 界面宽度; 热噪声

中图分类号: TG111.4

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2019)09-2835-06

枝晶生长不仅是材料凝固中最基础的问题, 同时也与材料凝固过程的一些复杂现象有着密切的联系^[1]。在材料的凝固过程中存在着复杂的热量和动量传输, 采用实验手段来控制材料的凝固过程需要同时控制较多的参数, 从而变得较为困难^[2]。随着计算机技术和数值计算方法的发展, 凝固过程中的微观组织模拟取得了显著的进步。由于不需要跟踪复杂的固液界面, 耦合了外场(温度场, 溶质场, 流场)的相场法已经成为了模拟凝固过程中复杂枝晶形貌的一个强有力工具^[3,4]。

目前为止, 材料凝固过程中的相场法模拟已经取得了很大的进展, 并仍在不断的进行完善^[5]。Karma 等^[6,7]对相场模型进行了薄界面厚度限制下的渐近分析, 得出了在一定界面厚度下有效的 Gibbs-Thomson 关系, 从而提出界面厚度可大于毛细长度的观点, 建立了可模拟大过冷度范围的相场模型。近年来, 在原有相场模型的基础上, 研究者进行了大量的研究并取得了与实验结果相符的模拟结果。其中, Provatas 等^[8]采用自适应网格划分法模拟了 2D 与 3D 下的枝晶生长, 显著提高了微观组织的尺度和计算效率。Haxnimali 等^[9]采用相场法模拟了枝晶演化过程中的取向转变现象, 并在实验中得到了验证。Dantzig 等^[10]采用相场法研究了不同界面能各向异性参数、过饱和度对枝晶形貌的影响。赵宇宏等^[11]采用耦合温度场的相场模型研究了温度场耦合强度对纯 Ni 枝晶生长的影响, 随着热耦合强度的增加, 枝晶界面出现扰动以及二次枝晶发生粗化。侯超杰等^[12]采用耦合热扰动的相场模型研究

了过冷度对 Ni-Cu 合金枝晶形貌及微观偏析的影响。Lan 等^[13]采用相场法研究了非等温下模拟区域大小, 过冷度, 噪声对枝晶形貌的影响。Xing 等^[14,15]采用相场法研究了定向凝固下各向异性强度以及抽拉速度对枝晶生长方向的影响, 进一步延伸了生长方向选择(DGP)定律。Kang^[16]等采用相场法研究了不同推进速度对枝晶形貌的影响, 随着推进速度增大, 枝晶尖端分裂的时间提前。

本研究采用相场法模拟 Al-Si 合金枝晶形貌的演化情况, 研究界面宽度及热噪声幅值对等轴枝晶形貌演化、溶质分布和尖端参数的影响。

1 相场模型

相场法本质上是扩散界面模型, 相场法与其他方法不同之处在于引入了一个新的变量 $\phi(r,t)$, 即相场变量。它是表示材料在位置 r 处, 时间 t 处的有序化数。在固液界面上相场变量 $\phi(r,t)$ 连续地从 -1 变化到 1。将相场变量 $\phi(r,t)$ 连续地从 -1 变化到 1 这个扩散层定义为界面, 即相场法中固液界面为扩散界面^[17]。

本研究采用的是 Ohno 和 Matsuura 改进的包含固相扩散系数的相场模型^[18,19], 模拟 Al-2%Si 合金凝固过程中的枝晶形貌及溶质分布。

首先, 定义一个无量纲参数 u :

$$u = \ln \frac{C}{[C_L^0 + C_S^0 / 2 + \phi(C_S^0 - C_L^0) / 2]}$$

则相场控制方程、溶质场控制方程、温度场方程如下:

收稿日期: 2018-09-10

基金项目: 国家自然科学基金(51774254, 51774253, 51701187, U1610123, 51674226, 51574207, 51574206); 山西省科技重大专项(MC2016-06)

作者简介: 张 冰, 男, 1993 年生, 硕士生, 中北大学材料科学与工程学院, 山西 太原 030051, E-mail: 570084772@qq.com

$$\tau \frac{\partial \phi}{\partial t} = w^2 \nabla^2 \phi + (\phi - \phi^3) - \frac{\lambda}{1 - k_e} (1 - \phi^2)^2 [e^u - 1]$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \left[D_L e^u \frac{C_L^0 \left[1 - \phi + k_e \frac{D_S}{D_L} (1 + \phi) \right]}{2} \nabla u \right] - \nabla \cdot j_{at}$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = D_T \nabla^2 \theta + \frac{1}{2} \frac{\partial \phi}{\partial t} - \nabla \cdot q(r, t)$$

式中, C_S^0, C_L^0 为固/液平衡浓度; τ 为驰豫时间; w 为界面宽度; λ 为无量纲化的相场参数, $\lambda = a_1 w / d_0$, 其中 $a_1 = 0.8839$, d_0 为溶质毛细长度, $d_0 = -\Gamma_{sl} / [m(1 - k_e)C_L^0]$, m 为合金液相线斜率; k_e 为溶质平衡分配系数; D_S, D_L 为固/液相溶质扩散系数; j_{at} 为溶质截留项; 无量纲温度 $\theta = (T - T_m) / (L / C_p)$; T_m 为熔点温度; L 为潜热; C_p 为合金定压热容; D_T 为热扩散系数; $\nabla \cdot \vec{q}(\vec{r}, t)$ 为遵循 Gaussin 分布的热噪声项^[20],

$$\langle q_m(\vec{r}, t), q_n(\vec{r}', t) \rangle = 2DF_u \delta_{mn} \delta(\vec{r} - \vec{r}') \delta(t - t');$$

F_u 为热噪声幅值,

$$F_u = \frac{k_B T_m^2 C_p}{L^2 w_0^2} = \frac{k_B T_m^2 C_p}{L^2 d_0^2} \left(\frac{d_0}{w_0} \right)^2 = F_{exp} \left(\frac{d_0}{w_0} \right)^2, \text{ 式中 } k_B \text{ 为}$$

Boltzmann 常数。

立方对称晶体的各向异性通过 $w(\vec{n}) = w_0 A(\vec{n})$,

$\tau = \tau_0 A(\vec{n})^2$ 引入^[21], 其中

$$A(\vec{n}) = 1 + \varepsilon_1 \left(Q - \frac{3}{5} \right) + \varepsilon_2 \left(3Q - 66S - \frac{17}{7} \right),$$

$$Q = n_x^4 + n_y^4 + n_z^4, S = n_x^2 n_y^2 n_z^2, \vec{n} \text{ 为界面法向量, } \varepsilon_1$$

与 ε_2 分别对应晶体择优取向 [100] 与 [110] 方向各向异性强度。

2 数值求解

2.1 初始条件和边界条件

取半径 r_0 的初始球形晶核:

$$x^2 + y^2 + z^2 \leq r_0^2 \quad \phi = 1, \theta = 0$$

$$x^2 + y^2 + z^2 > r_0^2 \quad \phi = -1, \theta = -\Delta$$

置初始晶核置于计算区域立方体的一角, 设枝晶轴对应于直角坐标系的 x 轴、 y 轴、 z 轴; 初始界面为球形, 它代表凝固开始时的晶核。为了减小计算量, 计算取 1/8 立方体区域 ($x, y, z \geq 0$)。 Δ 为无量纲过冷度, 在计算区域边界上采用 Zero-Neumann 边界条件。

2.2 数值求解方法

本研究采取自适应网格划分法 (图 1) 来提高三维相场模拟的计算效率, 首先设定划分网络的最大值 $d_{max} = 6w_0$, 最小值 $d_{min} = 0.75w_0$, 采用 ϕ 作为网格精炼的指标, 对界面处的网格进行细化^[22]。相场方程采

用 Euler 法求解, 其余方程采用 SIMPLE 法求解, 模拟选用的时间步长为 $0.05 \tau_0$ 。

2.3 数值求解方法

本研究对象为 Al-2%Si 合金, 模拟选用的物性参数^[23]如表 1 所列。

3 结果分析

3.1 界面宽度对枝晶形貌的影响

相场法中, 界面厚度的取值不仅会影响枝晶的生长形貌, 而且会影响枝晶的尖端稳态行为以及模拟结果的准确性^[24]。图 2 为不同界面厚度下枝晶稳态生长时的尖端半径, 当界面厚度 $w \leq 30d_0$ 时, 枝晶尖端生长行为有较好的收敛性。

图 3 为 $600 \tau_0$ 时不同界面宽度下枝晶形貌的溶质场图, 可以看出当界面厚度较小时, 固液界面的稳定性较低, 枝晶生长较为发达, 主枝晶较细, 二次枝晶更为成熟, 形成的较早且有较多由二次枝臂融合而成

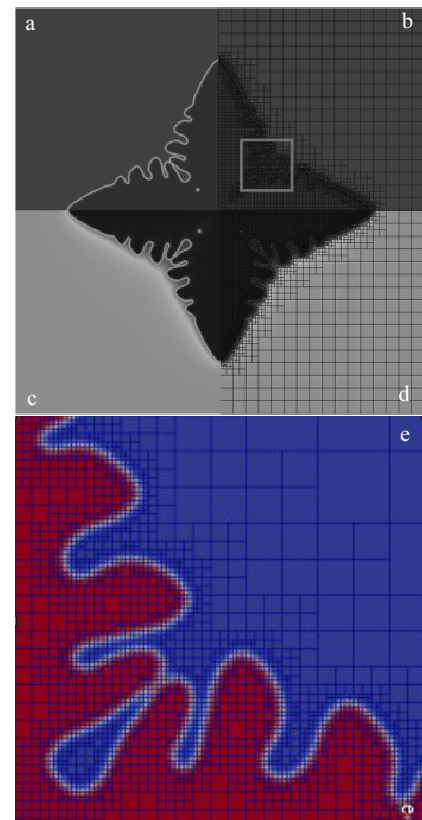


图 1 不同视角下枝晶形貌图

Fig.1 Dendrite morphologies under different angle of view: (a) phase-field diagram, (b) adaptive grid diagram of phase-field, (c) solute field diagram, (d) adaptive grid diagram of solute field, and (e) magnifying diagram of pane of Fig.1b

表 1 模拟参数的取值

Table 1 Values of simulation parameters

Property	Value
Liquid slope, $m/K \cdot \%^{-1}$	-939
Solute equilibrium partition coefficient, k_e	0.08
Solute diffusion coefficient in liquid, $D_L/m^2 \cdot s^{-1}$	3×10^{-9}
Solute diffusion coefficient in solid, $D_S/m^2 \cdot s^{-1}$	1×10^{-12}
Density, $\rho/kg \cdot m^{-3}$	2.65×10^3
Latent heat of fusion, $L_f/J \cdot mol^{-1}$	10470
Melting temperature, T_m/K	933.6
d_0/m	5×10^{-9}
ε_1	0.10
ε_2	0.00

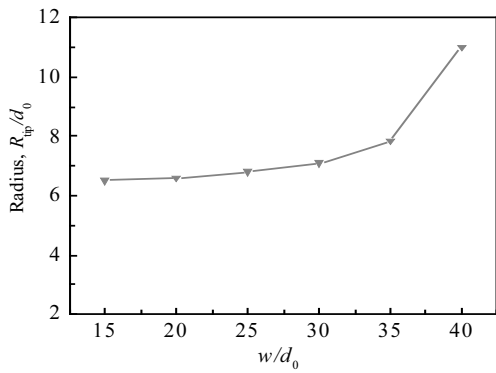


图 2 不同界面厚度下枝晶稳态生长时的尖端半径

Fig.2 Tip radius of steady-state dendrite growth at different interface widths

的孔隙，并由三维溶质场图可以发现部分三次枝晶。这是由于液相中溶质的扩散速度小于枝晶的生长速度，凝固析出的溶质不能充分扩散到液相中，所以枝晶前沿产生大量的溶质富集，如图 3a；随着界面厚度的增加，界面的稳定性增加，主枝晶变得粗大，并且

出现颈缩现象，二次枝晶的数量和长度显著减少，形成的较晚，且无三次枝晶的出现。由于枝晶生长排出了大量溶质无法得到充分扩散，使得溶质富集在一次枝晶臂凹谷处和二次枝晶间，如图 3b；界面厚度进一步增加，主枝晶略粗，已基本看不到二次枝晶，且枝晶前沿溶质的富集程度下降，三维下枝晶根部出现溶质富集是由于 X、Y、Z 方向的枝晶主干排出大量溶质汇聚所造成的，如图 3c 和 3d。

图 4 为不同界面宽度下枝晶尖端的生长速度曲线。可以看出当界面宽度较小时，由于界面的稳定性较低，所以尖端速度的波动较大。随着界面宽度的增加，尖端速度趋于一个稳定值，且界面宽度越大，尖端速度越小。这是由于三维下当界面宽度较小时，由自适应网格产生的随机噪声极易被放大造成的，这与 Greenwood 等^[25]的理论分析结果一致。

图 5 为不同界面宽度下枝晶尖端的浓度变化曲线。可以看出当界面宽度较小时，枝晶尖端液相处的溶质浓度较大。随着界面宽度的增加，枝晶尖端液相处的溶质浓度下降。这是由于液相中溶质的扩散速度小于枝晶尖端的生长速度，随着界面厚度的增加，枝晶尖端的生长速度下降，尖端析出溶质可以更好的排到液相中去，所以枝晶尖端液相处的溶质浓度下降。

3.2 热噪声幅值对枝晶形貌的影响

在枝晶的生长过程中，溶质分布和热扰动会使界面失稳，从而产生复杂的枝晶形貌^[17]。图 6 为 $750\tau_0$ 时不同热噪声幅值下枝晶形貌的相场图，可以看出不存在热噪声时，枝晶整体形貌规则对称，由于三维下热噪声已经不是引发枝晶侧枝的必要条件^[26]，二次枝晶呈对称分布于枝晶主干上且二次枝晶间距较为均匀，如图 6a 所示；当开始加入热噪声时，枝晶主干受扰动变化较小，尖端形貌基本无变化，但二次枝晶开始变大，且主干处的二次枝晶开始出现左右不对称的形貌，枝晶形貌变得不规则，如图 6b 所示；随着噪声

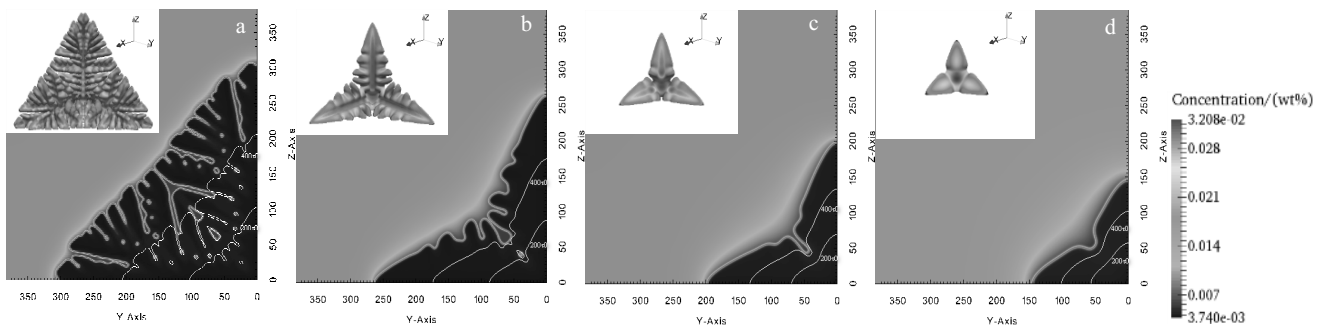


图 3 $600\tau_0$ 时不同界面宽度下枝晶形貌的溶质场图

Fig.3 Solute field diagram of dendrite morphology at different widths at $600\tau_0$: (a) $w_0=15d_0$, (b) $w_0=20d_0$, (c) $w_0=25d_0$, and (d) $w_0=30d_0$

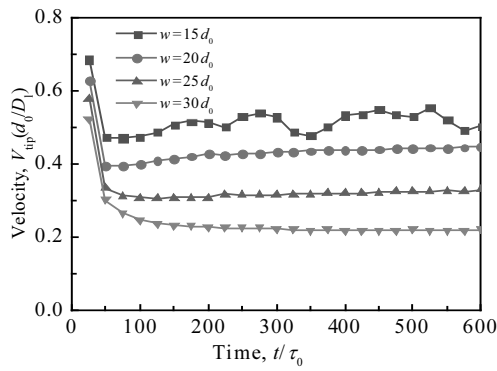


图 4 不同界面宽度下枝晶尖端的生长速度曲线

Fig.4 Growth velocity curves of dendrite at different interface widths

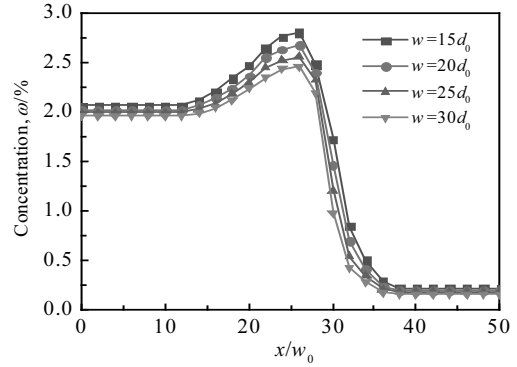


图 5 不同界面宽度下枝晶尖端的浓度变化曲线

Fig.5 Dendrite tip concentration variation with interface width

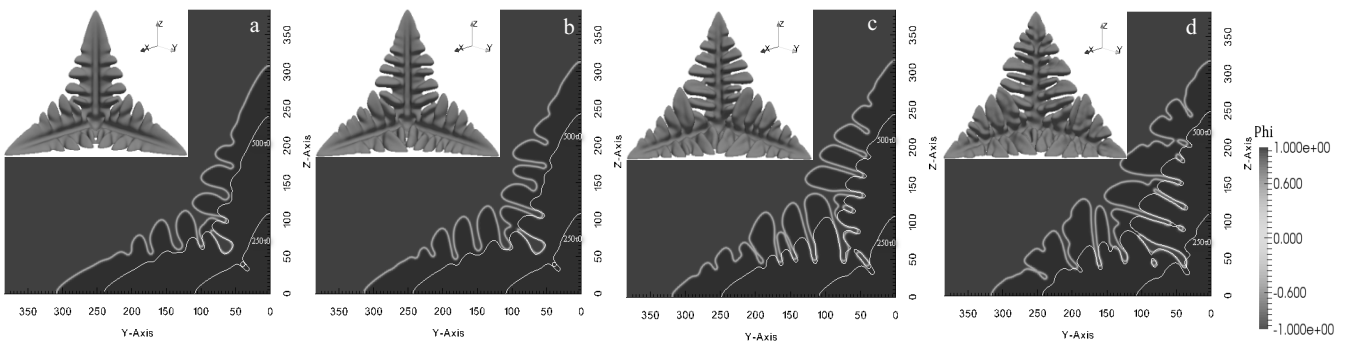


图 6 750 τ_0 时不同热噪声幅值下枝晶形貌的相场图

Fig.6 Dendrite morphologies under different thermal noise amplitude at 750 τ_0 : (a) $F_u=0$, (b) $F_u=10^{-5}$, (c) $F_u=10^{-4}$, and (d) $F_u=10^{-3}$

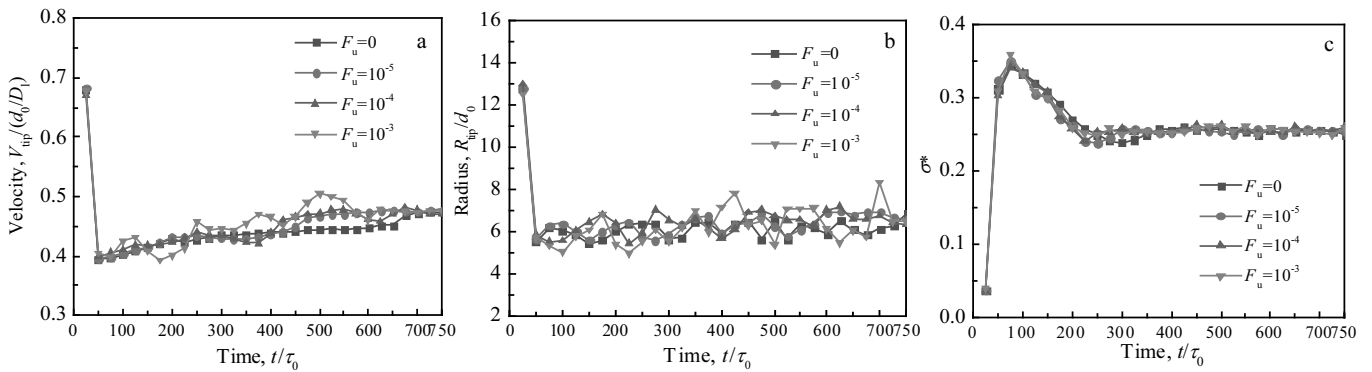


图 7 不同热噪声幅值下枝晶尖端参数变化曲线

Fig 7 Parameters variation curves of dendrite tip under different thermal noise amplitude: (a) tip velocity, (b) tip radius, and (c) steady-state coefficient

继续增加，枝晶主干尖端形貌与二次枝晶间距基本无变化但二次枝晶的数量和不对称度增加，经过比较 500 τ_0 与 750 τ_0 时枝晶形貌的相场图，可以发现二次枝晶间的竞争生长现象，如图 6c 所示；当噪声继续增加到 $F_u=10^{-3}$ 时，枝晶整体形貌变得不规则，枝晶主干尖端形貌与二次枝晶间距仍基本保持不变，但主干处的

二次枝晶可以明显看出左右不对称的形貌，同时三次枝晶开始出现。由此可知热噪声幅值主要影响二次枝晶的生长，热噪声幅值越大则二次枝晶生长越大且枝晶形貌的不对称度越大，而二次枝晶间距以及枝晶主干的大小和尖端形貌受热噪声幅值的影响较小。

为进一步定量讨论不同热噪声幅值对枝晶尖端稳

态行为的影响,绘制了不同热噪声幅值下枝晶尖端参数变化曲线,如图7所示。从图7可以较为明显的看出,随着时间的推移,热噪声幅值增加虽然会使枝晶尖端和半径在一定范围内出现波动,但最后枝晶尖端速度和半径都逐渐趋于收敛。根据LM-K理论^[27],枝晶的生长稳定性取决于稳态常数 $\sigma^*(\sigma^*=2D_1d_0/R_{tip}^2V_{tip})$,由图7c可知,稳态常数后期基本保持稳定。由此可知当三维下热噪声幅值取值适当时,热噪声并不影响枝晶尖端稳态行为。这一结果与Zhu等^[28]的模拟结果相一致。

4 结 论

1) 利用包含固相扩散系数的相场模型,采用三维自适应网格划分方法模拟了Al-Si合金凝固过程中的枝晶生长。

2) 通过对比不同界面宽度下Al-2%Si合金的溶质场形貌,随着界面宽度的增加,枝晶形貌的复杂度下降,二次枝晶的形貌及数量变小,枝晶尖端生长速度下降,枝晶尖端液相处溶质浓度下降。

3) 通过对比不同热噪声幅值下Al-2%Si合金的枝晶形貌,随着热噪声幅值的增加,枝晶主干尖端形貌变化较小,位于枝晶主干两侧的二次枝晶的数量和不对称度增加。

参考文献 References

- [1] Ramirez J C, Beckermann C. *Acta Materialia*[J], 2005, 53(6): 1721
- [2] Kurz W, Fisher D J. *Fundamentals of Solidification*[M]. Beijing: Higher Education Press, 2010: 1
- [3] Pan S, Zhu M, Rettenmayr M. *Acta Materialia*[J], 2017, 132(15): 565
- [4] Asta M, Beckermann C, Karma A *et al.* *Acta Materialia*[J], 2009, 57(4): 941
- [5] Moelans N, Blanpain B, Wollants P. *Calphad-Computer Coupling of Phase Diagrams & Thermochemistry*[J], 2008, 32(2): 268
- [6] Karma A, Rappel W J. *Physical Review Letters*[J], 1996, 77(19): 4050
- [7] Echebarria B, Karma A, Folch R *et al.* *Physical Review Letters*[J], 2004, 70(6): 061 604
- [8] Provatas N, Greenwood M, Athreya B *et al.* *International Journal of Modern Physics B*[J], 2005, 19(31): 4525
- [9] Haxhimali T, Karma A, Gonzales F *et al.* *Nature Materials* [J], 2006, 5(8): 660
- [10] Dantzig J A, Napoli P D, Friedli J *et al.* *Metallurgical & Materials Transactions A*[J], 2013, 44(12): 5532
- [11] Zhao Yuhong(赵宇宏), Liu Weijin(刘卫津), Hou Hua(侯华). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(4): 841
- [12] Hou Chaojie(侯超杰), Jin Yuchun(靳玉春), Zhao Yuhong(赵宇宏) *et al.* *The Chinese Journal of Nonferrous Metals* (中国有色金属学报)[J], 2016, 26(1): 60
- [13] Lan C W, Chang Y C, Shih C J. *Acta Materialia*[J], 2003, 51(7): 1857
- [14] Xing H, Zhang L M, Song K *et al.* *International Journal of Heat and Mass Transfer*[J], 2017, 104: 607
- [15] Xing H, Ankit K, Dong X L *et al.* *International Journal of Heat and Mass Transfer*[J], 2018, 117: 1107
- [16] Kang Y S, Jin Y C, Zhao Y H *et al.* *Journal of Iron and Steel Research*[J], 2017, 24(2): 171
- [17] Dantzig J A, Rappaz M. *Solidification*[M]. Beijing: Science Press, 2009: 1
- [18] Ohno M, Matsuura K. *Acta Materialia*[J], 2010, 58(17): 5749
- [19] Ohno M, Matsuura K. *Physical Review E*[J], 2009, 79(1): 031 603
- [20] Karma A, Rappel W J. *Physical Review E*[J], 1999, 60(4): 3614
- [21] Ramirez J C, Beckermann C, Karma A *et al.* *Physical Review E*[J], 2004, 69(1): 051 607
- [22] Jeong J H, Goldenfeld N, Dantzig J A. *Physical Review E*[J], 2001, 64(4): 041 602
- [23] Tourret D, Clarke A J, Imhoff S D *et al.* *JOM*[J], 2015, 67(8): 1776
- [24] Xie Y, Dong H B, Dantzig J A. *Computational Materials Science*[J], 2013, 70: 71
- [25] Greenwood M, Hoyt J J, Provatas N. *Acta Materialia*[J], 2009, 57(9): 2613
- [26] Shang S, Guo Z, Han Z. *Journal of Applied Physics*[J], 2016, 119(16): 1948
- [27] Langer J S, Müller-Krumbhaar H. *Acta Metallurgica*[J], 1978, 26(11): 1689
- [28] Zhu C S, Wang Z P, Jing T *et al.* *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2004, 14(6): 1106

Three-Dimensional Phase Field Simulation of Dendritic Morphology of Al-Si Alloy

Zhang Bing, Zhao Yuhong, Wang Hong, Chen Weipeng, Hou Hua

(North University in China, Taiyuan 030051, China)

Abstract: Based on the Karma thin interface phase-field model with the solid diffusivity, the effects of interface width and thermal noise on the dendrite growth behavior in undercooled melt of Al-Si alloy were studied by a three-dimensional adaptive meshing method. The simulation results show that with the increase of interface width, the complexity of dendrite morphology, the dendritic tip velocity and the solute concentration at the tip liquid phase decrease. With the increase of thermal noise amplitude, the dendritic tip changes slightly, and the number and asymmetry of secondary dendrites located on both sides of the dendrite increase.

Key words: phase-field method; dendritic growth; three-dimensional adaptive grid; interface width; thermal noise

Corresponding author: Zhao Yuhong, Ph. D., Professor, School of Materials Science and Engineering, North University of China, Taiyuan 030051, P. R. China, E-mail: zhaoyuhong@nuc.edu.cn