

• 材料开发 Material Development •

# 凝固过程小晶面枝晶生长的相场法模拟研究进展

王智平<sup>1,2</sup>, 王宝成<sup>1,2</sup>, 肖荣振<sup>1,2</sup>, 朱昶胜<sup>2</sup>, 冯力<sup>1,2</sup>, 路阳<sup>1,2</sup>

(1.兰州理工大学 甘肃省有色金属新材料省部共建国家重点实验室,甘肃 兰州 730050;2.兰州理工大学 材料科学与工程学院,甘肃 兰州 730050)

**摘要:**基于 Eggleston 等人提出的小晶面枝晶生长的相场模型,阐述了国内外采用相场法模拟小晶面枝晶生长的研究现状,对不同的模拟结果进行了分析讨论。结果认为,相场模型的取值还存在较大的人为因素,需要设计相对理想、简单并且可以控制的试验,确定相场参数和实际材料及环境参数的精确联系,避免计算的人为因素,保证模拟结果的精确性。

**关键词:**相场法;各向异性;小晶面

中图分类号: TG113

文献标识码: A

文章编号: 1000-8365(2014)05-0867-04

## Research Progress of Phase-field Method Simulation for Faceted Dendritic Growth in Solidification Process

WANG Zhiping<sup>1,2</sup>, WANG Baocheng<sup>1,2</sup>, XIAO Rongzhen<sup>1,2</sup>, ZHU Changsheng<sup>2</sup>, FENG Li<sup>1,2</sup>, LU Yang<sup>1,2</sup>

(1. Key Laboratory of Non-ferrous Metal Alloys and Processing of the Ministry of Education, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China; 2. School of Materials Science and Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China)

**Abstract:** Based on the phase-field model of faceted dendritic growth which proposed by Eggleston et al, the domestic and overseas research status of faceted dendritic growth were expounded using phase-field simulation, and the different simulation results were discussed. The results show that the evaluation of phase field model has major man-made factors, which need relative ideal, simple and controllable experiments in design, so as to determine the accurate contact of phase-field parameters, actual materials and environment parameters, avoid the man-made factors in calculation, ensure the accuracy of the simulation results.

**Key words:** phase-field approach; anisotropy; faceted crystal

枝晶作为铸件最基础的组织形态,其结构、形貌和成分的变化受众多因素的影响。由于用实验的方法来研究铸件中枝晶的生长规律有时间周期长、经济效益低、工作量过大等弊端,使得传统的实验方法不能满足社会经济发展的需要。随着计算机技术的快速发展及凝固理论和数值模型的不断完善,使得采用数值模拟的方法来研究枝晶的生长规律越来越受到人们的重视<sup>[1]</sup>。

相场法作为一种被广泛接受的模拟凝固过程微观组织演化和控制的方法,自上世纪 80 年代提出以来便倍受关注<sup>[2-6]</sup>。相场法以 Ginzburg-Landau 理论为基础,引入相场变量  $\Phi(x, t)$  来表示系统在空间/时间上每个位置的物理状态(液态或固态);其中  $x$  为空间变量,  $t$  为时间变量。 $\Phi=1$  表示固相,  $\Phi=0$

或  $\Phi=-1$  表示液相,在固液两相区,  $\Phi$  值在 0~1 或 -1~1 之间连续变化,无量纲。

对于立方晶系金属/合金,其凝固过程相场模型的界面能表示为:

$$\varepsilon(\theta) = \bar{\varepsilon} [1 + \gamma_\varepsilon \cos 4(\theta - \theta_m)] \quad (1)$$

式中,  $\gamma_\varepsilon$  为无量纲的各向异性强度;  $\theta$  为界面法向与特定方向的夹角;  $\bar{\varepsilon}$  为常数,其值由界面能、界面厚度及熔点决定;  $\theta_m$  为最先失去取向的方向。

界面处平衡态时的 Gibbs-Thomson 方程<sup>[7]</sup>:

$$(\varepsilon(\theta) + \varepsilon_{(0)}) \kappa = f^L - f^S = 1 - 15 \gamma_\varepsilon \cos 4(\theta) \quad (2)$$

其中,  $f^L$ 、 $f^S$  分别为固相和液相的自由能密度,  $\kappa$  为界面曲率。当  $f^L - f^S > 0$ , 即在  $\gamma_\varepsilon < 1/15$  的情况下,称为弱的各向异性强度,凝固界面二维形式表现为连续光滑曲线;然而当  $\gamma_\varepsilon > 1/15$ , 即在强的各向异性条件下时,使得方程(2)左侧为负值,为了使得固相晶体的能量最低,某些高能取向方向就会消失,这时就会出现所谓的失去取向的现象,表现在 Wulff 结构图上就是出现耳朵状封闭区域,如图 1。这种位于平整界面之间的耳朵状区域使得原始的相场法模型变

收稿日期:2013-11-19

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51161011, 11364024)

作者简介:王智平(1956-),山东菏泽人,教授,博导。研究方向:凝固宏微观场模拟。电话:15002663409,

E-mail: shaouwangbaocheng@126.com

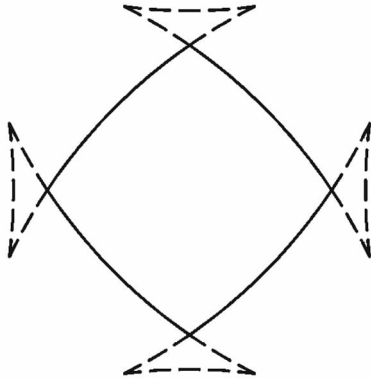


图1 强各向异性条件下枝晶形貌的 Wulff 结构  
Fig.1 Wulff construction of dendrite morphology under high anisotropy

得不可用，相场模型的有效模拟是将该区域移去后所获得的模拟结果。本文将强的界面能各向异性引入到相场模型中，探讨了不同的小晶面枝晶生长的模拟结果，提出了该领域进一步的研究方向。

### 1 小晶面枝晶的相场模型

本文基于 Warren 等提出的二元合金等温凝固相场模拟，在该模型中，温度场的变化被忽略。通过引入熵函数来建立模型<sup>[7]</sup>：

$$s = \int [s(\phi, e, c) - \frac{\epsilon^2}{2} |\nabla \phi|^2] dx^3 \quad (3)$$

式中， $s$  代表热力学熵密度， $e$  是内能密度， $c$  为溶质  $B$  在溶剂  $A$  中的浓度。通过要求熵密度函数  $s(0, e, c)$  和  $s(1, e, c)$  在固 / 液相中有相同形式，忽略凝固过程中体系的体积变化，可获得相场及溶质场控制方程：

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M_\phi \{ \nabla \cdot \epsilon^2 \nabla \phi - [(1-c)H^A + cH^B] \} \quad (4)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot D_c [ \nabla c + \frac{v_m}{R} c(1-c)(H^B - H^A) ] \nabla \phi \quad (5)$$

式中， $H^A$  为相场参数，可定义为如下形式：

$$H^A = W^A g'(\phi) + 30g(\phi)L^A (\frac{1}{T} - \frac{1}{T_m^A}) \quad (6)$$

$H^B$  和  $H^A$  有相同形式。 $M_\phi$  为与界面动力学相关的无量纲参数，定义如下：

$$M_\phi = (1-c)M^A + cM^B \quad (7)$$

式(5)中， $D_c$  为溶质扩散系数，定义如下：

$$D_c = D_s + p(\Phi)(D_l - D_s) \quad (8)$$

式中， $D_s$  和  $D_l$  分别为固相和液相中的溶质扩散系数。将上式中  $p(\Phi)$  定义为：

$$p(\Phi) = \Phi^3(10 - 15\Phi + 6\Phi^2) \quad (9)$$

当  $\Phi=1, 0$  时， $p(\Phi)$  分别对应于液相和固相。在式(6)中，将  $g(\Phi)$  定义为双势阱函数，分对应  $\Phi=1, 0$  时取极小值，其形式如下：

$$g(\phi) = \phi^2(1-\phi)^2 \quad (10)$$

通过求解固、液共存的相场模型方程，可获得计算参数  $W_{A,B}, M_{A,B}$ 、与合金材料热物性参数间的关系为：

$$M^A = \frac{(T_m^A)^2 \beta^A}{6\sqrt{2} L^A \delta^A} \quad (11)$$

$$W^A = \frac{3\sigma^A}{\sqrt{2} T_m^A \delta^A} \quad (12)$$

$$\frac{\epsilon^2}{T_m^A} = \frac{6\sqrt{2} \sigma^A \delta^A}{T_m^A} = \frac{6\sqrt{2} \sigma^B \delta^B}{T_m^B} \quad (13)$$

而  $M^B, W^B$  具有与  $M^A, W^A$  相同形式。其中  $T_m^A$  为纯物质  $A$  的熔点， $\beta$  为界面动力学系数， $L^A$  为纯物质  $A$  的结晶潜热， $\delta$  为界面厚度， $\sigma$  为表面能。

图 2 为  $\gamma_\epsilon=0.20$  时  $\epsilon^{-1}(\theta)$  的极图。可以发现，当  $\gamma_\epsilon > 1/15$  时，在  $1/\epsilon$  的极图上就表现为向内部的抛物线状的凹陷，在这部分内凹的区域各向异性消失，基于极图上的内凹区域处于不稳定或是亚稳定状态，使得相场模拟过程表现不连续。通过确定内凹区域的夹角，可以获得各向异性消失的范围。同时，在  $1/\epsilon$  极图右边的切线处，其横坐标值达到极值：

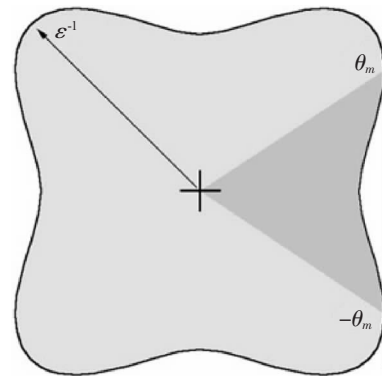


图2  $\gamma_\epsilon=0.20$  时  $\epsilon^{-1}(\theta)$  的极图  
Fig.2 Polar plot of  $\epsilon^{-1}(\theta)$  when  $\gamma_\epsilon=0.20$

$$\frac{d}{d\theta} (\frac{1}{\epsilon(\theta)} \cos\theta) = 0 \quad (14)$$

解方程得  $\theta = \theta_m$ <sup>[8]</sup>。

为使相场法模拟具有有效性，需对界面能进行如下校正<sup>[8]</sup>：

$$\epsilon^0 = \begin{cases} \epsilon(\theta) & (\frac{\pi}{2}i + \theta_m) \leq |\theta| \leq \frac{\pi}{2}(i+1) - \theta_m \\ \frac{\epsilon(\theta_m)\cos\theta}{\cos(\theta_m)} & (\frac{\pi}{2}i - \theta_m) \leq \theta \leq (\frac{\pi}{2}i + \theta_m) \end{cases} \quad (15)$$

上式中  $i$  取 0~3 之间的整数，在此只讨论  $i$  取 0 的情形。通过联立方程(5)、(7)，可得相场模型的修正形式为：

$$\text{当 } \theta_m \leq |\theta| \leq \frac{\pi}{2} - \theta_m \text{ 时}$$

$$\phi M_\phi = [\bar{\varepsilon}^2 \eta^2 \nabla^2 \phi - (1-c)H^A - cH^B] + \bar{\varepsilon}^2 \eta \eta' [\sin(2\theta)(\phi_{yy} - \phi_{xx}) + 2\cos(2\theta)\phi_{xy}] - (1/2)\bar{\varepsilon}^2 [\eta'^2 + \eta \eta''] \times [2\sin(2\theta)\phi_{xy} - \nabla^2 \phi - \cos(2\theta)(\phi_{yy} - \phi_{xx})]$$

当  $|\theta| \leq \theta_m$  时

$$\phi M_\phi = [\bar{\varepsilon}^2 \eta^2 \nabla^2 \phi - (1-c)H^A - cH^B] + (\frac{\varepsilon(\theta_m)}{\cos(\theta_m)})^2 \phi_{xx}$$

### 2 小晶面枝晶生长模拟研究进展

早期模拟二元合金凝固微观组织的相场模型以 Wheeler 等人提出的 WBM 模型<sup>[9]</sup>,以及 Kim 等人提出的 KKS 模型<sup>[10,11]</sup>最为典型,其在模拟各种类型非小晶面枝晶生长过程中均表现出强的适应性,被研究者广泛接受。

2001 年, Eggleston 将界面能的校正形式应用于相场法模拟模型,使得相场模型可以成功模拟强各向异性条件下的小晶面枝晶生长。Suzuki 利用该校正模型模拟了 Si-Ni 二元合金小晶面枝晶生长,如图 3<sup>[12]</sup>。其中,过冷度  $\Delta T=80$  K 时可以发现,枝晶生长尖端曲率效应消失,界面前沿的变化不再是光滑连续形式,而在枝晶生长根部界面变得不稳定,产生棱角状的非连续形貌。图 4 为实验获取深过冷条件下 Si 的小晶面枝晶生长形貌<sup>[13]</sup>,可以发现,界面前沿

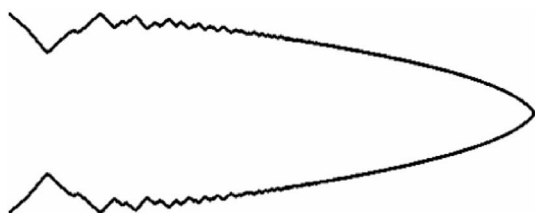


图 3 Si-20%Ni 合金小晶面枝晶形貌  
Fig.3 Faceted dendritical morphology of Si-20%Ni alloy

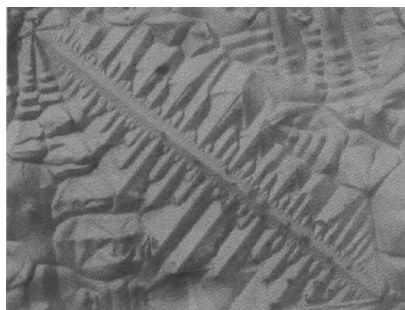


图 4 深过冷条件下 Si 的小晶面枝晶形貌  
Fig.4 Faceted dendritical morphology of Si under the condition of high undercooling

小晶面晶体形貌成型前期过冷度和生长速率是非线性的,而在小晶面晶体形貌成型后的生长阶段过冷度和生长速率表现为线性关系。

### 3 结语

(1)相场法基于确定形核模型,模拟单个晶粒界

呈现棱角状非连续结构,枝晶根部产生明显的颈缩效应及断裂效应,对比相场法模拟结果表明,改进模型后的相场模型预测小晶面枝晶生长在定性上具有有效性。

图 5 为作者利用 Eggleston 的校正模型模拟 Si-Ni 合金的小晶面枝晶生长形貌。其中,各向异性强度系数为  $\gamma_\varepsilon=0.15$ ,过冷度为  $\Delta T=35$  K。可以发现,晶体生长呈现棱角状树枝晶,枝晶尖端尖锐,曲率效应消失,固/液界面为粗糙不平的锯齿状界面,为典型的小晶面树枝晶生长形态。由于 Si-Ni 合金溶质分配系数小于 1,枝晶生长过程溶质分布出现了反偏析的现象,界面处溶质浓度高于最早结晶的枝干部分的溶质浓度,而溶质的最高浓度分布在二次枝晶间。

此外, J.M.Debierre 等人也提出了另外一种强各向异性条件下小晶面枝晶的界面能的校正模型<sup>[14]</sup>,模型研究了针状枝晶的小晶面生长;并提出了一种小晶面针状枝晶生长的近似解析理论。Uehara 等<sup>[15]</sup>模拟了 Ni 在强动力学各向异性条件下的二维小晶面枝晶生长,讨论了各向异性对枝晶形貌及尖端稳态行为的影响,模拟结果与“Wulff”形貌较好的吻合。Kasajima 等<sup>[16]</sup>将小尺寸固/液界面极限运用到相场模型中,模拟了过冷 Si 溶体凝固过程中的小晶面枝晶生长,模拟结果与 Gibbs-Thomson 关系基本近似。张国伟等<sup>[17]</sup>研究了纯 Ni 在强动力学各向异性和高界面能各向异性作用下的小晶面枝晶的演化,发现当过冷度发生变化时,晶体生长速率由热扩散控制转变为界面动力学系数控制。王锦程等<sup>[18]</sup>讨论了水杨酸苯酯小晶面晶体生长的三维形态,表明在

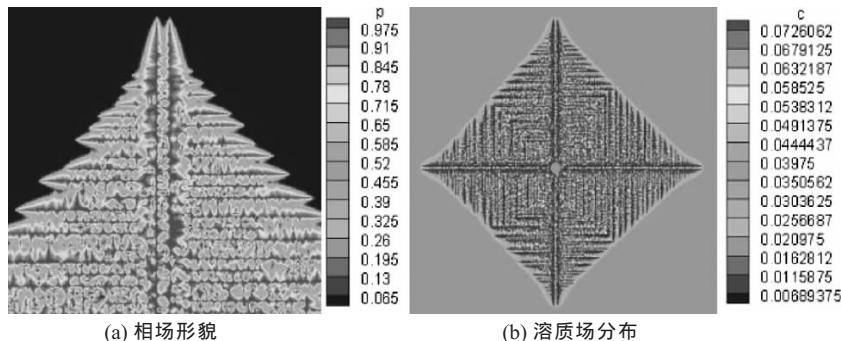


图 5 小晶面枝晶模拟结果  
Fig.5 Simulation results of faceted dendrite

面形态及凝固特征参数较为准确,但在实际金属凝固过程中,晶粒生长受到影响因素较多,会存在非小晶面生长向小晶面生长的转变。因此,需建立统一的相场模型能模拟其转变过程。

(2)在已有的小晶面枝晶生长的相场模型中,通常仅考虑各向异性作用下的生长形式;而其他因素



如浓度、过冷度、外场等作用被忽略。模拟多场耦合条件下的凝固微观组织势在必行。

(3)相场模型的取值还存在较大的人为因素,需要设计相对理想、简单并且可以控制的试验,确定相场参数和实际材料及环境参数的精确联系,避免计算的人为因素,保证模拟结果的精确性。

#### 参考文献:

- [1] 柳百成. 铸造技术与计算机模拟发展趋势 [J]. 铸造技术, 2005, 26(7): 611-617.
- [2] Collins J B, Levine H. Diffuse interface model of diffusion limited crystal growth [J]. Physical Review B, 1985, 31 (9): 6119-6122.
- [3] Caginalp G, Fife P C. Phase field model for interfacial boundaries[J]. Physical Review B, 1986, 34(7): 4940-4943.
- [4] Caginalp G, Fife P C. Dynamics of layered interfaces arising from phase boundaries[J]. SIAM Journal on Applied Mathematics, 1988, 48(3): 506-518.
- [5] Fife P C, Gill S G. The phase-field description of mushy zones [J]. Physica D: Nonlinear Phenomena, 1989, 35 (1): 267-275.
- [6] Fife P C, Gill S G. Phase transition mechanisms for the phase-field model under internal heating [J]. Physical Review A, 1991, 43(2): 843-851.
- [7] Warren J A, Boettinger W J. Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase-field method [J]. Acta Metallurgica et Materialia, 1995, 43 (2): 689-703.
- [8] Eggleston J J, Mcfadden G B, Voorhees P W. A phase-field model for highly anisotropic interface energy [J]. Physica D: Nonlinear Phenomena, 2001, 150(1): 91-103.
- [9] Wheeler A A, Boettinger W J, McFadden G B. Phase-field model for isothermal phase transitions in binary alloys[J]. Physical Review A, 1992, 45(10): 7424-7439.
- [10] Karma A, Rappel W J. Phase-field method for computationally efficient modeling of solidification with arbitrary interface kinetics[J]. Physical Review E, 1996, 53(4): 3017-3020.
- [11] Kim S G, Kim W T, Suzuki T. Phase-field model for binary alloys[J]. Physical Review E, 1999, 60(6): 7186-7197.
- [12] Suzuki T, Kim S G, Kim W T. Two-dimensional facet crystal growth of silicon from undercooled melt of Si-Ni alloy[J], Materials Science and Engineering: A, 2007(449): 90-104.
- [13] Aoyama T, Kuribayashi K. Influence of undercooling on solid/liquid interface morphology in semiconductors[J]. Acta materialia. 2000, 48(14): 3739-3744.
- [14] Debierre J M, Karma A, Celestini F, et al. Phase-field approach for faceted solidification[J]. Physical Review E, 2003, 68(4): 041604.
- [15] Uehara T, Sekerka R F. Phase field simulations of faceted growth for strong anisotropy of kinetic coefficient [J]. Journal of Crystal Growth, 2003, 254(1): 251-261.
- [16] Kasajima H, Nagano E, Suzuki T, et al. Phase-field modeling for facet dendrite growth of silicon[J]. Science and Technology of Advanced Materials. 2003, 4(6): 553-557.
- [17] Zhang Guowei, Hou Hua, Cheng Jun. Phase field model for strong anisotropy of kinetic and highly anisotropic interface energy [J]. Transactions of the Nonferrous Metals Society of China, 2006(16): 307-313.
- [18] WANG Jincheng, INATOMI Yuko. Three-dimensional Phase Field Modeling of the Faceted Cellular Growth[J]. ISIJ International. 2010, 50(12): 1901-1907.

技术资料邮购

## 《铸件均衡凝固技术及应用实例》

《铸件均衡凝固技术及应用实例》由西安理工大学魏兵教授编著。共8章:1、铸铁件均衡凝固与有限补缩;2、铸铁件冒口补缩设计及应用;3、压边浇冒口系统;4、浇注系统大孔出流理论与设计;5、铸件均衡凝固工艺;6、铸钢、白口铸铁、铝、铜合金铸件的均衡凝固工艺;7、浇注系统当冒口补缩设计方法;8、铸件填充与补缩工艺定量设计实例。全书320页,特快专递邮购价226元。邮购咨询:魏兵教授029-82312140

邮购地址: 邮编: 710048 西安理工大学608信箱 铸造技术杂志社  
电话传真: 029-82312140 029-82312421 13609155628