

文章编号: 1004 - 0609(2004) 06 - 0928 - 06

凝固微观组织的多层次模拟^①

郭洪民¹, 杨湘杰²

(1. 南昌大学 材料科学与工程学院, 南昌 330047; 2. 南昌大学 机电工程学院, 南昌 330029)

摘 要: 通过引入溶质再分配、溶质扩散、界面能各向异性和界面曲率, 构建了描述合金凝固微观组织形态演变的元胞自动机模型。在介观和微观尺度上的模拟结果表明, 该模型可有效地解决微观组织形成的多尺度问题。模拟结果清晰地再现了与实测结果相一致的枝晶形态和生长现象。根据分形理论采用分维定量比较了模拟结果和实验结果, 两者的计盒维数分别为 1.703 和 1.694, 阐述了分维定量表征枝晶形貌的物理含义。模拟结果表明熔体过冷度和树枝晶的计盒维数呈近似抛物线关系。

关键词: 微观组织模拟; 多尺度; 元胞自动机; 分维

中图分类号: TG 248

文献标识码: A

Multi-scale modeling of solidification microstructure

GUO Hong-min¹, YANG Xiang-jie²

(1. School of Materials Science and Engineering, Nanchang University,
Nanchang 330047, China;

2. School of Mechanical and Electronic Engineering, Nanchang University,
Nanchang 330029, China)

Abstract: A modified model was built up by adopting solute diffusion, solute redistribution, interface anisotropy and interface curvature at S/L interface. Simulation results at mesoscopic and microscopic levels exhibit a number of experimental features, which indicate that the present model can effectively solve the multi-scale problem during solidification. Based on the fractal theory, the dendritic morphologies from simulation and experiment were compared using fractal dimension, the box counting dimensions of simulation and experiment results are 1.703 and 1.694 respectively. The physical meanings of fractal dimension characterizing dendritic morphology was discussed. The results of simulations indicate that the relationship between melt undercooling and box counting dimension of dendrite is close to parabola.

Key words: microstructure modeling; multi-scale; cellular automaton; fractal dimension

凝固工艺主要在米~微米空间尺度范围内影响微观组织的形成, 是一个典型的多尺度问题。由于空间尺度范围跨越很大, 因此要预测微观结构和材料宏观性能之间的关系, 就有必要同时采用多种不同空间尺度模型和模拟方法。到目前为止, 已开发出来的研究凝固微观组织演变的模拟方法主要有: 蒙特卡罗方法^[1, 2]、元胞自动机^[3~6]、相场法^[7, 8]等。其中多数模型在创立之初就被限定在某

一特定的空间尺度范围内, 在其特定的应用场合都能比较精确地体现微观组织特性。与之相反, 作为对连续体空间进行离散化和映射处理的派生方法, 元胞自动机方法不存在物理特征线度或时间刻度的内禀标定问题^[9], 即对连续体系统的元胞自动机模拟, 需要定义相应的基本单元和对应的演变规则, 以便恰当地展现系统在给定层次上的行为特性。所以元胞自动机方法可以模拟宏观—纳观整个微观组

① 基金项目: 江西省教育厅科技项目; 江西省自然科学基金资助项目(0250006)

收稿日期: 2003-10-10; 修订日期: 2004-04-08

作者简介: 郭洪民(1977-), 男, 助教, 博士研究生。

通讯作者: 郭洪民, 电话: 0791-8304135; E-mail: hmguo_email@163.com

织空间的微观组织特性。

在 MicrosCA 模型框架^[10]基础上, 本文作者尝试采用元胞自动机方法计算晶粒的形核和形态演变, 耦合宏观浓度场和温度场守恒方程, 同时考虑液/固界面处溶质再分配、界面能各向异性及 Gibbs-Thompson 效应, 建立 MicrosCA-Solidification 模型, 模拟铝合金凝固过程中的宏观组织和微观组织, 即多层次模拟。另外, 引入分维定量表征树枝晶的形态特征, 进而说明模拟结果与实验结果的吻合程度。

1 数学模型(MicrosCA-Solidification)

1.1 元胞自动机模型

按照 MicrosCA 模型, 模拟凝固微观组织演变的元胞自动机模型可实例化为: 1) 元胞形状 正方; 2) 邻居构型 Moor 邻居; 3) 元胞属性 控制变量包括浓度、温度、固相率 $\phi \in [0, 1]$ (体现相场的变化) 和晶体学取向, 主导变量包括固态 ($\phi = 1$)、液态 ($\phi = 0$) 和生长状态 ($\phi \in (0, 1)$) (体现元胞状态的变化); 4) 演变规则 元胞状态按照形核和生长两种规则改变自身状态。

本文作者采用 Rappaz 连续形核模型^[3]计算熔体内与模臂表面的晶粒形核密度与形核概率。模拟初始, 模拟空间内的所有元胞均为液相。由于形核在一定的过冷度下发生, 因此需为每个预形核元胞产生正态分布的临界形核过冷度。演变过程中, 若预形核元胞为液态并且局部过冷度大于其临界形核过冷度, 元胞因形核而转变为生长状态, 并为其随机选取一个晶体学取向 θ ($[-45, 45]$)。

只有处于生长状态的元胞具有生长能力, 其生长过程包括自身固相率的演变及捕获周围液态元胞两个阶段。元胞生长速度由 KGT 模型^[4]计算, 界面过冷度可用下式计算:

$$\Delta T(t) = T_L - T(t) + (c(t) - c_0)m_L - \Gamma \cdot \bar{K}(t) \cdot f(\Theta, \theta) \quad (1)$$

式中 T_L , c_0 , m_L 和 Γ 分别为液相线平衡温度、初始浓度、液相线斜率和 Gibbs-Thompson 系数; $T(t)$, $c(t)$, $\bar{K}(t)$ 和 $f(\Theta, \theta)$ 分别为液固界面 t 时刻的温度、浓度、界面曲率和界面能各向异性; Θ , θ 分别为液固界面法向方向和枝晶晶体学取向。

界面能各向异性对等轴枝晶生长形态有很大的影响, 可由下述经验公式计算^[11]:

$$f(\Theta, \theta) = 1 + \delta \cos[4(\Theta - \theta)] \quad (2)$$

式中 δ 为界面张力的扰度, 对于体心立方晶系,

δ 可取 0.04。

若元胞 p 的固相率为 ϕ , 其平均界面曲率可由计盒法近似计算^[12]:

$$\bar{K}_p(t) = \frac{1}{dx} \left| 1 - 2 \frac{\phi_s(t) + \sum_{j=1}^N \phi(j)}{N+1} \right| \quad (3)$$

式中 N 为元胞 p 的邻居数, 本模型取为 36。凸形界面平均曲率取值范围是 $[0, 1/dx]$, 凹形界面平均曲率取值范围为 $[-1/dx, 0]$ 。

计算过程中, 用生长速度来确定元胞在每一时间步内的固相率变化。若元胞 p 的固相率达到 1, 即完全凝固, 状态转变为固态, 并捕获邻居液态元胞, 被捕获元胞的晶体学取向同元胞 p , 并转变成生长状态。有关元胞状态转变的具体算法可参考文献[13]。

1.2 溶质扩散

当元胞因生长或形核转变为固态时, 其浓度按照液固界面溶质的局部平衡发生变化, 向周围液态邻居元胞释放溶质, 释放量为 $c_{\text{reject}} = (1 - k)c_L$

$$c_s(t) = k \cdot c_l(t) \quad (4)$$

式中 $c_s(t)$ 、 $c_l(t)$ 、 k 分别为界面固相与液相的平衡浓度、溶质分配系数。

忽略固相中的溶质扩散, 在液态区域内溶质分布采用混合溶质守恒方程描述:

$$\frac{\partial}{\partial t}[(\phi c_l) + (1 - \phi)c_l] = \nabla[D \cdot \nabla(C)] \quad (5)$$

式中 D 、 C 分别为液相中溶质扩散系数和元胞浓度。

1.3 能量守恒

$$\rho_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla[\lambda \nabla(T)] + L \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (6)$$

式中 ρ 为密度, c_p 为比定压热容, λ 为热导率, L 为结晶潜热。

2 计算机实验和分析

本文作者采用有限差分法离散上述扩散方程和守恒方程。为了实现微观组织的多层次模拟, 面临的主要问题之一是宏观场与晶粒生长动力学间的耦合。在温度场与元胞自动机耦合方面, 本模型以顺序集成为主线, 采用双重时间步(宏观时间步 Δt , 微观时间步 δ)和双重网格划分(粗网格和细网格)的思想, 利用改进的微观潜热法处理温度场守恒方程中的热源项。采用粗网格和宏观时间步处理宏观

温度场, 在一个宏观时间步内, 采用空间内插数据处理技术将宏观温度场转变成微观温度场。在浓度场与元胞自动机耦合方面, 模型采用相同的空间步长和时间步长将两者紧密地耦合在一起。

从理论上讲, MicrosCA-Solidification 模型具有描述金属凝固微观组织演变的能力, 但若没有相应计算机软件系统的支持, 该模型是一个不可操作的、无法进行实际应用的模型。为此, 本文作者以 Visual C++ 6.0 为软件开发平台, MFC 为开发工具, C++ 为开发语言, 从底层初步构建模拟系统, 软件的设计思想采取较为流行的面向对象的设计方法。

2.1 宏观凝固组织计算机模拟

模拟空间为 300×300 , 元胞分辨率为 $15 \mu\text{m}$, 相当于 $4.5 \text{ mm} \times 4.5 \text{ mm}$ 的试样。为了便于比较和验证, 参照文献[3], 模臂和熔体采用不同的形核参数。图1所示为 988、918 和 888 K 浇注温度下, Al-7.0% Si 合金晶粒在模臂表面形核并向熔体内部生长的过程。图1中合金的液态用深衬度表示, 其它颜色表示晶粒的不同结晶取向。

比较 Rappaz 和 Gandin^[3, 4] 和本文作者模拟结果可知: 二者都较好地再现了铸锭中三种晶粒组织, 主要区别在于前者得到的等轴晶晶粒组织较圆整。在 Rappaz 和 Gandin 模型中, 枝晶尖端生长速

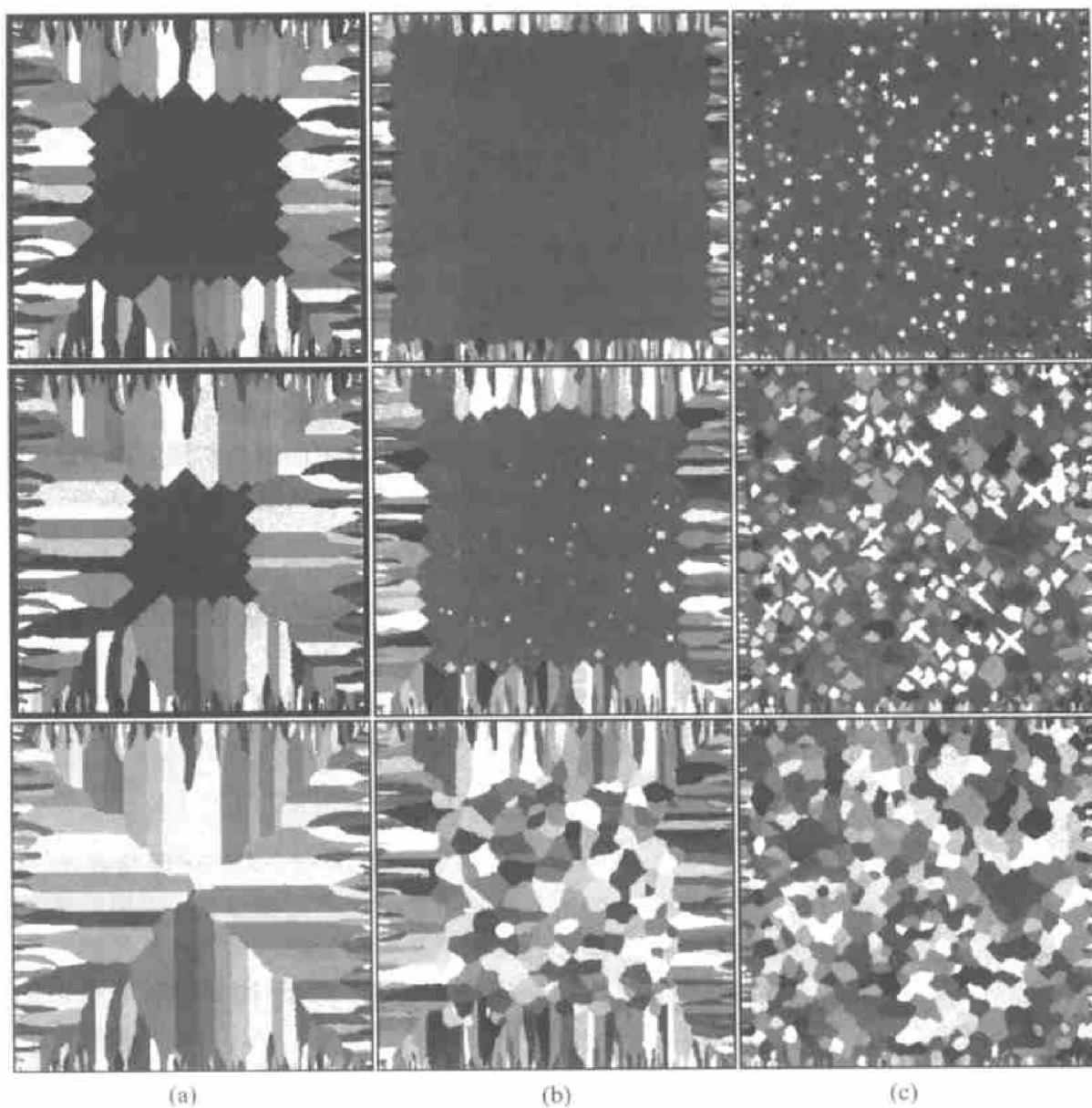


图1 不同浇注温度下微观组织演变及 CET

Fig. 1 Microstructure evolution and CET at different pouring temperatures

(a) —988 K; (b) —918 K; (c) —888 K

度仅仅考虑了温度过冷, 并且将等轴晶的二维形状近似成正方形。对纯金属而言, 这个假设是正确的。对于合金而言, 由于存在着溶质再分配, 在液相中必然形成一定的浓度梯度, 从而造成晶粒的生长形态发生改变。MicrosCA-Solidification 模型不仅考虑了枝晶尖端生长动力学, 并且考虑了溶质再分配、界面曲率、界面各向异性等影响晶粒生长形态的物理因素和机制。从模拟结果可以看出, 在溶质再分配的作用下, 枝晶生长前沿溶质变得很不均匀 (见图 2), 结合界面曲率和界面能各向异性的综合作用, 使得枝晶尖端生长速度不同、元胞凝固温度不同, 因此枝晶尖端生长状态元胞不可能同时转变为固态元胞。在图 2 中表现为液/固界面不是均匀地向前推进, 而是有些部位生长得快, 有些部位生长得慢, 晶粒生长形状很不规则。

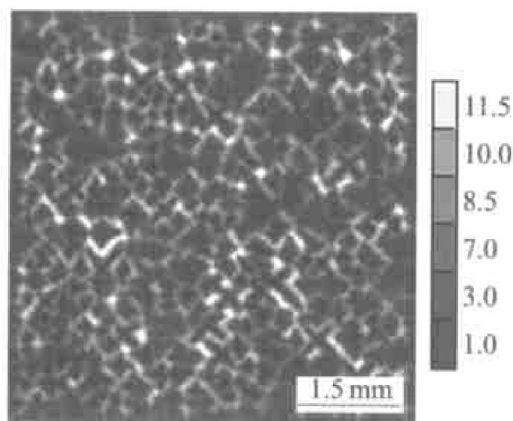


图 2 图 1(c) 终态组织的浓度场

Fig. 2 Concentration field of final microstructure in Fig. 1(c)

2.2 2D Al-4.5% Cu 合金枝晶生长模拟

模拟空间由 200×200 个正方形元胞构成, 元胞尺寸为 $0.5 \mu\text{m}$, 此尺寸可体现枝晶尖端半径。模拟初始, 晶体学取向为 $\pi/5$ 的晶核被置于模拟空间的中心。模拟合金为 Al-4.5% Cu, 初始温度为 1018 K 。

2.2.1 枝晶形态演变

图 3 所示为 Al-4.5% Cu 合金的自由生长历程。一般认为, 凝固过程中的界面温度扰动、浓度扰动或相扰动促进竞争生长, 进而产生分枝结构。在模拟枝晶的分枝结构时, 相场法需人为地在模型中加入扰动, 通常有非能量守恒扰动 (在相场控制方程中加入) 和能量守恒扰动 (在温度场控制方程中加入) 2 种, 其中能量守恒扰动起决定作用。然而是否二次枝晶的出现必须加入扰动尚无肯定的说法。

图3所示明确地说明了一次枝晶臂的生长与粗

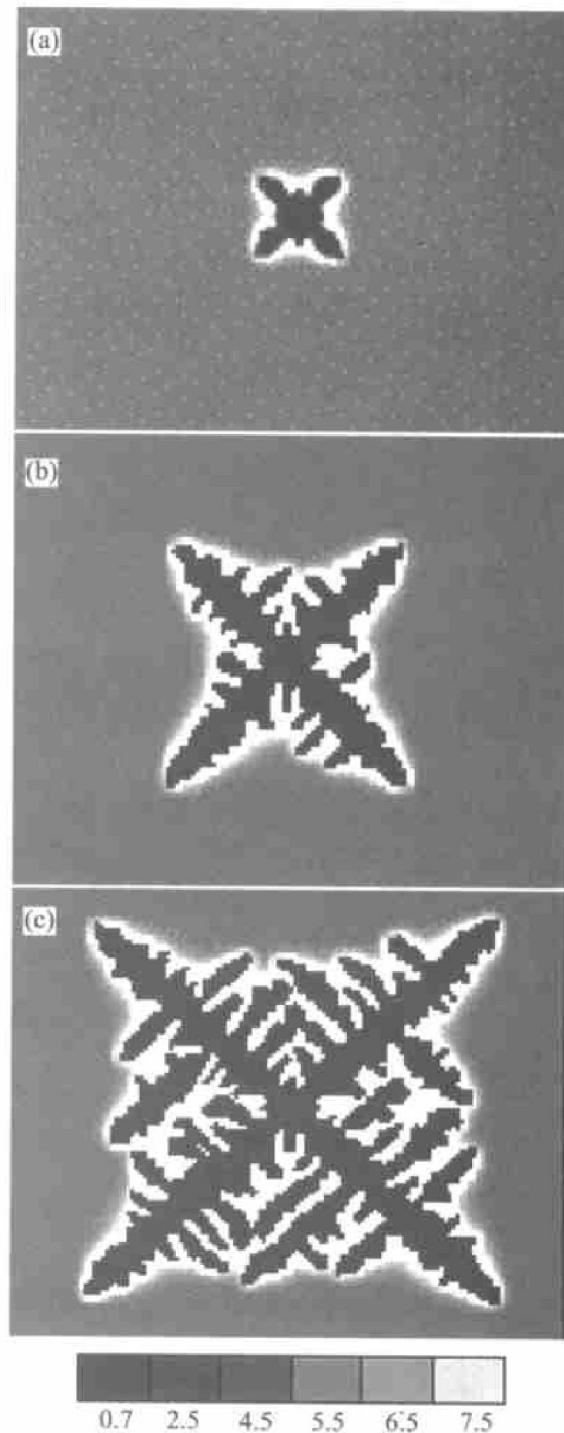


图 3 等轴枝晶自由生长

Fig. 3 Freely growing of equiaxed dendrite
(a) -0.002349 s ; (b) -0.006508 s ; (c) -0.11584 s

化、二次和三次枝晶臂的分化及溶质偏析。随着一次晶臂的生长和粗化, 溶质再分配将导致液固界面附近液相中溶质的富集 (图中的背景灰度), 与界面能各向异性综合作用, 影响着合金的凝固温度和界面局部过冷度。正方形网格划分的空间不对称性在计算浓度场时引起一定的扰动, 经竞争生长后扰动被放大, 破坏了液固界面的稳定性, 激发生成二次晶和三次晶的分枝结构。界面曲率是促使界面稳定的因素, 若增大 Gibbs-Thompson 系数, 分枝特性会

减弱。另外,模拟结果证实了 Glicksman 等^[14]在 1993 年的实验发现:三次晶臂总是在二次晶臂上产生,并且只在二次枝晶臂的一侧生长,而不是在两侧同时生长。造成这种现象的主要原因为:1) 在等轴晶凝固过程中,液固界面存在正温度梯度;2) 在枝晶内部溶质浓度较高且不易扩散,因而不利于凝固,而二次枝晶外侧由于存在较大浓度梯度,利于向液相扩散,因而枝晶利于向外侧生长。

2.2.2 枝晶形貌的分维表征

图 4 所示为实验的实测结果。比较图 4 和图 3,模拟结果清晰地再现了与实测结果相一致的枝晶形态和生长现象,如图 4 中箭头指示的三次晶单侧生长现象。下面通过分形维数定量地说明模拟结果与实测结果的吻合程度。

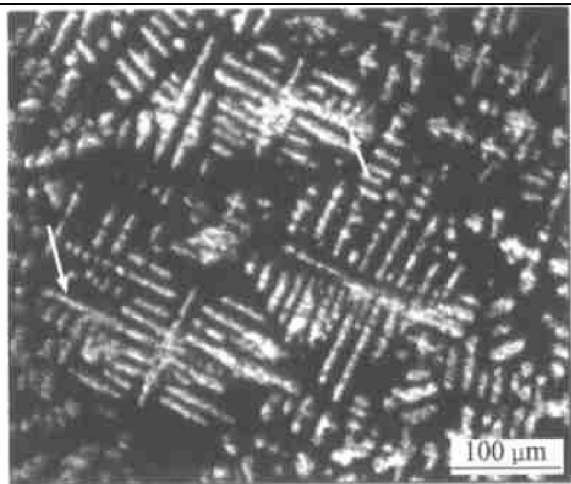


图 4 实验获得的 Al-4.5% Cu 合金的枝晶形貌

Fig. 4 Dendritic morphology of Al-4.5% Cu alloy from experiment

分形是一种探索无规则现象内部所隐含的某种规律和物理机制的有力工具。研究表明^[15],实际的枝晶结构具有分形特征,金相截面上树枝晶分布的计盒维数是表达树枝晶形态的有效参数。计盒维数计算的基本思想为:将模拟和实验获得的分形结构作二值化计算机图像处理,用边长为 r 的正方形覆盖分形结构;计数至少包含分形图中一个点的方格数 $N(r)$;改变 r 值,求出不同的 $N(r)$;用最小二乘法拟合 $\ln N(r)$ 和 $\ln r$ 间的关系曲线。对于分形结构, $\ln N(r) - \ln r$ 有很好的线性区,线性区的斜率即为分形结构的分维 D 。图 5 所示为图 3(c) 和图 4 的计盒维数计算结果。从图 5 可见, $\ln N(r) - \ln r$ 近似直线关系,表明图 3(c) 和图 4 中的枝晶结构具有统计自相似性。两者的分维分别为 $D_1 = 1.703$ 、 $D_2 = 1.694$,进一步说明模拟结果与实测结果在枝晶形态上非常相近。

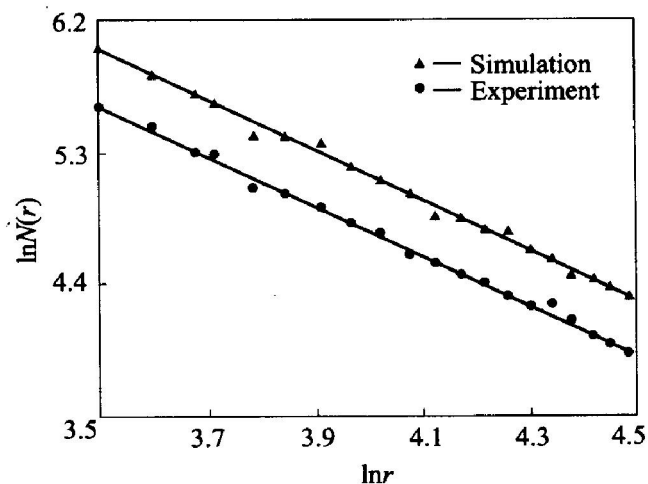


图 5 树枝晶形态的计盒维数测定

Fig. 5 Measurement of fractal dimension for dendritic morphology

在金属凝固过程中,熔体的过冷度极大影响着晶粒的生长形态。根据模拟结果,熔体过冷度对枝晶计盒分维的影响趋势如图 6 所示,两者呈现近抛物线关系。由于温度扩散系数较溶质扩散系数大 3~4 个数量级,因此晶粒的生长动力学可视为主要由溶质扩散决定。熔体过冷度小,液相内的原子扩散能力较好,溶质扩散充分,液固界面前沿溶质富集程度减弱,有利于保持近球形生长,此时晶粒的分维接近于 2。随着过冷度增加,在界面各向异性和成分过冷度共同作用下,晶粒主要以一次晶臂扩展的形式生长,呈现 noodle 状,分维逐渐降低。进一步增加过冷度,一次晶臂上开始出现二次晶,甚至二次晶臂上出现三次晶,分维逐渐增加。当过冷度达到一定程度时,溶质扩散距离将小于模拟空间

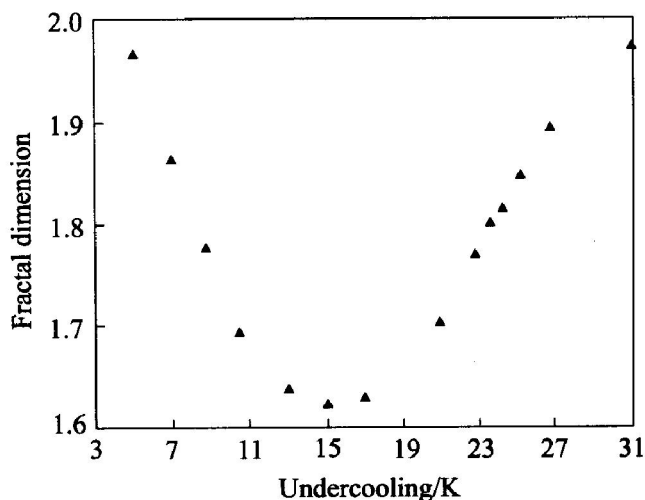


图 6 熔体过冷度对枝晶分维的影响

Fig. 6 Effect of undercooling on fractal dimension

元胞边长,晶粒生长将处于稳态,分维将达到最大

值 2。

通过上述分析可以认为: 表征凝固微观组织的分维代表着分形结构填充空间的能力。小的分形维数意味着微观组织内部结构存在较大的空白区, 二次晶臂或三次晶臂间的间距大。由图 6 可知, 出现二次晶后, 随着熔体过冷度的增加, 树枝晶填充空间的能力增加, 二次晶臂或三次晶臂间的间距势必减小, 甚至粗化消失。

3 结论

1) 通过引入溶质扩散、溶质再分配和界面曲率等物理机制, MicrosCA-Solidification 模型较好地实现了凝固微观组织的多层次模拟。

2) 本文模型中的元胞空间具有空间尺度的物理意义, 随着空间尺度的变化, 该模型能够再现不同空间尺度微观组织特性, 其模拟空间尺度范围可达 $10^{-5} \sim 10^{-8} \text{ m}$;

REFERENCES

- [1] ZHU Parr ping, Smith R W. Dynamic simulation of crystal growth by monte carlo method I. Model description and kinetics[J]. Acta Metall Mater, 1992, 40: 683 - 692.
- [2] ZHU Parr ping, Smith R W. Dynamic simulation of crystal growth by monte carlo method II. Ingot microstructures[J]. Acta Metall Mater, 1992, 40: 3369 - 3379.
- [3] Rappaz M, Gandin C A. Probabilistic modeling of microstructure formation in solidification processes[J]. Acta Metal Mater, 1993, 41: 345 - 360.
- [4] Gandin G A, Rappaz M. A coupled finite element-cellular automaton model for the prediction of dendritic grain structures in solidification processes[J]. Acta Metal Mater, 1994, 42: 2233 - 2246.
- [5] Nastac L. Numerical modeling of solidification morphologies and segregation patterns in cast dendritic alloys[J]. Acta Mater, 1996, 47: 4253 - 4262.
- [6] 刘永刚, 陈 军, 潘 冶, 等. Al-4.5% 合金凝固过程显微组织的数值模拟[J]. 中国有色金属学报, 2002, 12(6): 1130 - 1135.
LIU Yong-gang, CHEN Jun, PAN Ye, et al. Microstructure simulation of solidification process of Al-4.5% Cu binary alloy[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2002, 12(6): 1130 - 1135.
- [7] Ode M, Gyoon S, Suzukl T. Recent advances in the phase-field model for solidification[J]. ISIJ International, 2001, 41(10): 1076 - 1082.
- [8] Warren J A, Boettinger W J. Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase field method[J]. Acta Metal Mater, 1995, 43: 689 - 703.
- [9] 罗伯 A D. 计算材料学[M]. 北京: 化学工业出版社, 2002. 9.
Rollet A D. Computational Materials Science[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2002. 9.
- [10] 郭洪民, 刘旭波, 杨湘杰. 元胞自动机法模拟微观组织演变的建模框架[J]. 材料工程, 2003(8): 23 - 27.
GUO Hong-min, LIU Xu-bo, YANG Xiang-jie. Model framework for microstructure evolution modeling with cellular automata[J]. Journal of Materials Engineering, 2003(8): 23 - 27.
- [11] Ditley U, Paviyk V. Numerical simulation of dendritic morphology and grain growth with cellular automata[A]. Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes VIII[C]. 1998. 589 - 596.
- [12] Nastac L. Simulation of microstructure evolution during solidification of inconel 718[J]. AFS Transaction, 1996, 104: 425 - 434.
- [13] 郭洪民, 危仁杰, 杨湘杰. 一种改进的模拟凝固微观组织的宏微观耦合模型[J]. 特种铸造及有色合金, 2003(5): 26 - 28.
GUO Hong-min, WEI Ren-jie, YANG Xiang-jie. A modified coupled macro-micro model simulating solidification microstructure of alloys[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2003(5): 26 - 28.
- [14] Glicksman M E, March S P. Handbook of Crystal Growth 1B[M]. North Holland: Amsterdam Publishers, 1993.
- [15] 王有明, 孙国雄. 灰铸铁组织特征的分形研究[J]. 材料科学与工程, 1998, 16(3): 26 - 29.
WANG You-ming, SUN Guo-xiong. Study of the fractal characterization of solidification structure of gray cast iron[J]. Materials Science & Engineering, 1998, 26(3): 26 - 29.
- [16] 张玉妥, 李殿中, 李依依, 等. 相场法模拟纯物质的等轴晶生长[J]. 金属学报, 2002, 36(6): 589 - 591.
ZHANG Yu-tuo, Li Diann-zhong, Li Yi-yi. Simulation of equiaxed dendritic growth of a pour material using phase field method[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2002, 36(6): 589 - 591.

(编辑 何学锋)