

界面追踪法研究界面能各向异性对 定向凝固枝晶生长的影响 *

彭东剑 林鑫 张云鹏 郭雄 王猛 黄卫东
(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

摘要 运用基于界面追踪法的数值自洽模型研究了界面能各向异性对定向凝固枝晶生长的影响。模拟结果表明, 对于给定的凝固条件, 对应不同的一次间距 Péclet 数范围, 存在 2 个不同的界面形态解区间, 其中较小的间距 Péclet 数解区间对应的界面形态类似胞状晶, 较大的间距 Péclet 数解区间对应的界面形态类似枝状晶, 界面能各向异性的增大有利于枝晶解区间的扩大。同时, 枝晶生长的尖端临界稳定性参数 σ^* 与界面能各向异性参数 E_4 存在幂指数关系, 并基于 Fisher 枝晶扩散解, 得到包含界面能各向异性参数的枝晶尖端半径表达式: $R_{IMS} = 2.5646[\frac{\Gamma D_L}{\sqrt{k_0 \Delta T_0}}]^{0.5} E_4^{-0.1905}$, $\Delta T_0 = mC_0(k_0 - 1)/k_0$; 界面能各向异性增大, 枝晶生长界面前沿过冷度减小。枝晶生长稳态一次间距的选择主要取决于枝晶间溶质扩散场的相互作用, 而由于界面能各向异性在枝晶尖端作用的局域化, 使得界面能各向异性对定向凝固稳态一次枝晶间距影响较小。

关键词 界面能各向异性, 定向凝固, 枝晶尖端半径, 一次间距

中图分类号 TG111.4

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2013)03-0365-07

INVESTIGATION OF EFFECT OF INTERFACE ENERGY ANISOTROPY ON DENDRITIC GROWTH IN UNIDIRECTIONAL SOLIDIFICATION BY FRONT TRACKING SIMULATION

PENG Dongjian, LIN Xin, ZHANG Yunpeng, GUO Xiong, WANG Meng, HUANG Weidong

State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072

Correspondent: LIN Xin, professor, Tel: (029)88494001, E-mail: xlin@nwpu.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (Nos.50971102 and 50901061) and National Basic Research Program of China (No.2011CB610402)

Manuscript received 2012-09-21, in revised form 2012-11-15

ABSTRACT The dendritic growth with the different solid/liquid (S/L) interface energy anisotropies in the unidirectional solidification has been investigated using the self-consistent front tracking model. It is found that, for a given solidification condition, there were two kind of interface shape solutions with the different spacing Péclet number ranges. The interface shape with the small spacing Péclet number range was similar with cellular tip, and that with the large spacing Péclet number range referred to dendritic tip. The higher S/L interface energy anisotropy was in favor of the widening of the dendritic growth solution range. There was a certain power exponential relationship between the dendritic tip marginal stability parameter σ^* and the S/L interface energy anisotropic parameter E_4 . A modified Fisher dendritic tip solution, which considered the effect of S/L interface energy anisotropy, was obtained as follows: $R_{IMS} = 2.5646[\frac{\Gamma D_L}{\sqrt{k_0 \Delta T_0}}]^{0.5} E_4^{-0.1905}$, $\Delta T_0 = mC_0(k_0 - 1)/k_0$. The undercooling in front of the S/L interface decreased with increasing the anisotropic parameter. The primary dendritic spacing mainly depended on the interaction of solute diffusion field between the adjacent dendrite, and the S/L interface energy had little influence on

* 国家自然科学基金项目 50971102 和 50901061 及国家重点基础研究发展计划项目 2011CB610402 资助

收到初稿日期: 2012-09-21, 收到修改稿日期: 2012-11-15

作者简介: 彭东剑, 男, 1988 年生, 硕士生

DOI: 10.3724/SP.J.1037.2012.00556

the primary dendritic spacing due to its localized effect on the solute diffusion field near the dendritic tip.

KEY WORDS interface energy anisotropy, unidirectional solidification, dendritic tip radius, primary spacing

对于枝晶生长行为, 固/液界面能各向异性是影响晶体生长、形态演化和微观组织选择的一个非常重要的参数. 就自由枝晶生长来讲, 微观可解性原理 (microscopy solvability condition, MSC)^[1-3] 指出, 形成稳定的枝晶尖端形态的必要条件是界面能具有一定的各向异性, 此外, 微观可解性条件可以作为枝晶生长扩散解之外的另一个制约条件, 确定唯一的枝晶生长行为; 整体界面波理论 (global interface wave, GIW)^[4-6] 则认为, 当界面能各向异性小于临界值时, 枝晶生长不存在稳态针状枝晶解; 微观可解性理论和整体界面波理论都认为, 枝晶生长的尖端稳定性参数与界面能各向异性参数存在一定的幂指数关系.

需要指出的是, 无论是 MSC 原理还是 GIW 理论, 主要针对的是枝晶的自由生长行为, 而在强制性定向凝固枝晶生长研究中, 却很少有人关注界面能各向异性的影响. 特别是在早期的强制性定向枝晶生长研究^[7-13]中, 很多研究者都是直接将自由枝晶生长尖端扩散解应用到描述强制性枝晶生长行为, 而忽视了界面能各向异性的作用. 但是, 近年来, Utter 和 Bodenschatz^[14] 及李晨希等^[15] 分别采用实验研究了晶体位向所引起的二维生长平面界面能变化对定向凝固界面形貌的影响, 发现: 二维生长平面界面能趋于各向异性时, 凝固界面才会呈现典型的枝晶生长界面^[14]; 当二维生长平面界面能趋于各向同性时, 凝固界面将会呈现双胞结构界面或海藻界面, 得不到稳定的树枝晶生长结构^[15]. 也就是说, 界面能各向异性对强制性定向凝固的枝晶生长行为同样具有重要的影响. 王志军^[16] 采用 Karma 定量相场模型考察了无噪声条件下界面能各向异性对稳态枝晶生长的尖端状态选择影响, 发现界面能各向异性的增强使枝晶生长的尖端半径和尖端过冷度减小. 但是, 有意思的是, 在定向凝固组织研究中, 采用不考虑界面能各向异性的临界稳定性条件, 同样可以很好地预测枝晶稳态生长的一次间距^[7-9]; Lu 和 Hunt^[17] 通过其所发展的数值自洽模型也指出, 定向凝固枝晶间溶质扩散场的相互作用是决定枝晶生长更为重要的因素, 并发现, 可以在不考虑界面能各向异性情况下, 获得比较准确的稳态枝晶生长一次间距预测结果.

总体来说, 界面能各向异性作为影响自由枝晶生长行为的一个重要内在因素, 其在强制性定向凝固枝晶生长行为中的作用还有待进一步理清, 另外, 关于定向凝固枝晶尖端生长行为与界面能各向异性的定量关系的工作至今也鲜有报道. 然而, 在不包含界面能各向异性的情况下, 已有的关于定向凝固枝晶稳态生长的一次间距的理论模型的研究, 确实可以对实际枝晶生长的一次间距选择做出

比较准确的预测, 但其内在缘由仍不清晰. 因此, 本工作采用本课题组前期工作^[18]发展的描述定向凝固固/液界面形态演化的数值自洽界面追踪 (front tracking, FT) 模型, 通过固/液界面 Gibbs-Thomson 方程施加界面能各向异性的影响, 以期明晰界面能各向异性对强制性定向凝固枝晶生长行为的影响.

1 自洽模型的建立

1.1 模型的数学描述

在定向凝固条件下, 考虑与试样移动速率 V 相同但移动方向相反的线性温度场, 则界面温度可表示为

$$T_i = T_0 + Gz \quad (1)$$

式中, T_i 为固/液界面温度, T_0 为合金原始成分 C_0 对应的液相线温度, G 为外界强加的温度梯度, z 为在运动坐标系中平行于试样运动方向的界面位置. 在此运动坐标系中, 液相和固相满足的扩散方程分别如下:

$$D_L \nabla^2 C_L + V \frac{\partial C_L}{\partial z} = \frac{\partial C_L}{\partial t} \quad (2)$$

$$D_S \nabla^2 C_S + V \frac{\partial C_S}{\partial z} = \frac{\partial C_S}{\partial t} \quad (3)$$

式中, C_L 和 C_S 分别为液相和固相的溶质浓度; D_L 和 D_S 分别为液相和固相溶质扩散系数, t 为时间, 本工作是在稳态情况下进行的, 因此, 式 (2) 和 (3) 等式右边为 0. 在界面上, 液相和固相溶质浓度满足相平衡关系, 且满足界面溶质通量守恒条件

$$C_{S,i} = k_0 C_{L,i} \quad (4)$$

$$V_n (k_0 - 1) C_{L,i} = D_L \frac{\partial C_L}{\partial n} - D_S \frac{\partial C_S}{\partial n} \quad (5)$$

式中, k_0 为平衡溶质分配系数, $C_{L,i}$ 和 $C_{S,i}$ 分别为界面处液相溶质浓度和固相溶质浓度, n 为固/液界面法向, V_n 为固/液界面法向生长速度. 同时, 液相和固相溶质浓度还需满足远场条件

$$C_L = C_\infty = C_0, z = \infty \quad (6)$$

$$\frac{\partial C_S}{\partial z} = 0, z = -\infty \quad (7)$$

式中, C_∞ 为液相远场溶质浓度. 此外, 溶质场和温度场在固/液界面上存在耦合关系, 满足 Gibbs-Thomson 方程

$$T_i = T_0 + m(C_{L,i} - C_0) - \Gamma \left(\zeta \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) - \frac{V_n}{\mu} \quad (8)$$

式中, m 为液相线斜率, μ 为动力学系数, Γ 为表征界面能的 Gibbs-Thomson 系数, R_1 和 R_2 为固/液界面的主曲率半径, $\zeta = 1 - 15E_4 \cos(\theta)$ 为表征界面能各向异性的系数 (E_4 为界面能各向异性参数). 自洽的固/液界面可以在假定适当的初始固/液界面形状下, 通过联立式 (1)–(7), 并在界面上耦合方程 (8), 通过反复迭代而获得.

1.2 网格的划分与计算参数的选取

三维定向凝固时, 胞晶和枝晶形态通常呈现轴对称结构. 仅考虑轴对称结构的对称单元, 即半个胞晶和枝晶单元. 采用柱坐标系, 控制容积单元格划分采用内节点法 [19], 同时为了在离散方程中较为便利地处理固/液两相界面, 采用非均匀网格划分, 以使固/液界面刚好通过控制容积单元格的角. 图 1 给出了网格划分示意图. 其中, 边界 BD 与 AF 为对称边界, AB 为液相远场边界; EF 为枝晶间残余液相边界; DE 为固相远场边界; 而曲线 CE 为固/液相边界. 可以看到, 边界 AB 的长度为一次胞/枝晶间距 λ_1 的一半; 为保证计算结果有效性, 依据文献 [8, 17, 18, 20] 的工作, 固相区域的长度 DC 设定为 $2.5\lambda_1$, 尖端到远场边界 AB 的垂直距离 BC 不小于 $(0.5\lambda_1 + D_L/V)$.

整个计算区域网格划分的结点总数为 52×34 , 其中, 固/液界面 CE 上的结点 (不包括 C 和 E 点) 为 22 个. 界面上向根部回归的第一个界面点与枝晶尖端相位差为 0.07, 其余轴向网格以此为基础, 呈等比数列增长. 径向网格划分中, 除了界面区域的网格, 其余网格基于根部网格的径向尺寸, 采用同轴向一致的等比增长划分原则.

目前, 对于定向凝固枝晶生长较为定量的描述主要是基于透明模型合金的实验结果, 为此, 本工作计算所涉及的相关主要热物性参数采用透明合金 SCN-1.0%ACE (质量分数) 的相关物性参数 [21].

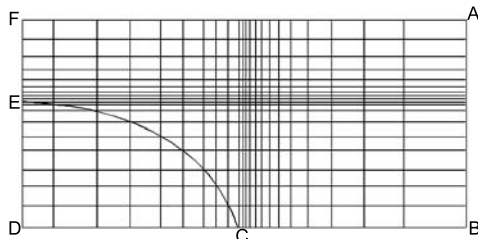


图 1 网格划分示意图

Fig.1 Sketch map of mesh division

2 计算结果与分析

模型计算的结果显示, 在给定的凝固控制参数情况下, 存在 2 组不同间距 Péclet 数范围的连续解. 图 2 给出了在抽拉速度为 $8 \mu\text{m/s}$, 温度梯度为 4 K/mm 时, 改变 SCN-1.0%ACE 透明合金的界面能各向异性参数, 所获得的界面前沿过冷度随着间距 Péclet 数的变化曲线. 可知, 界面前沿过冷度随着间距 Péclet 数的变化分

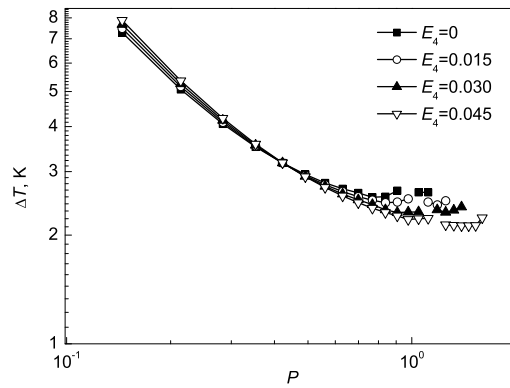


图 2 不同界面能各向异性参数 (E_4) 下界面前沿过冷度随间距 Péclet 数的变化

Fig.2 Variations of the undercooling (ΔT) in front of the solid/liquid interface against space Péclet number (P) for different values of surface anisotropic parameter (E_4)

为 2 个阶段: 在间距 Péclet 数较小时, 随间距 Péclet 数的增大界面前沿过冷度先快速降低至一极小值, 随后又缓慢增加, 直到达到一中断值; 此后, 界面前沿过冷度随着间距 Péclet 数的增加跃迁至另一区域, 该区域比前一区域间距 Péclet 数的变化级数明显减小, 同时, 变化也较为平缓, 但依然存在过冷度的极小值. 随着 E_4 的增大, 中断区间向间距 Péclet 数增大的方向移动, 后半段连续区间也随之向间距 Péclet 数增大的方向移动, 且区间范围增加. 此外, 随着 E_4 的增大, 间距 Péclet 数较小的区间对应的界面前沿过冷度减小的速度加剧, 后半段间距 Péclet 数较大的区间对应的界面前沿过冷度整体下降且更容易出现比前半段过冷度小的解. 图 3 给出了 E_4 为 0.015 时, 前半段连续区间内间距 Péclet 数分别为 0.353, 0.422, 0.491 和后半段连续区间内间距 Péclet 数分别为 1.115, 1.184, 1.254 时的自洽界面形状. 可以看出, 在这 2 个变化区, 界面呈现不同的生长形态特征, 间距 Péclet 数小的区间呈现类似胞晶界面生长 (图 3a), 间距 Péclet 数区大的区间呈现类似枝晶界面生长 (图 3b), 为此, 定义图 2 左边间距 Péclet 数小的区间的晶体生长对应胞晶生长, 而右边间距 Péclet 数大的区间的晶体生长对应枝晶生长. 实际上, Somboonsuk 等 [22] 在透明合金定向凝固胞枝晶转变的研究中也发现, 枝晶生长选择的一次间距比胞晶生长选择的一次间距大.

由图 2 和 3 的分析可知, 即使本模型中给定 E_4 为 0 时, 依然可以得到稳态生长的枝晶解, 但得到的枝晶解范围比较窄, 且界面前沿过冷度较大, 这与 Lu 和 Hunt [17] 数值自洽模型计算结果相符. E_4 的增大, 一方面使枝晶生长区间的界面前沿过冷度减小, 同时, 枝晶生长区间过冷度的减小幅度大于胞晶区间, 按照最高界面生长温度假设 [23–25], 这在同等丰富形核的条件下将使枝晶生长更容易占优; 另一方面, 界面前沿过冷度随着间距 Péclet 数

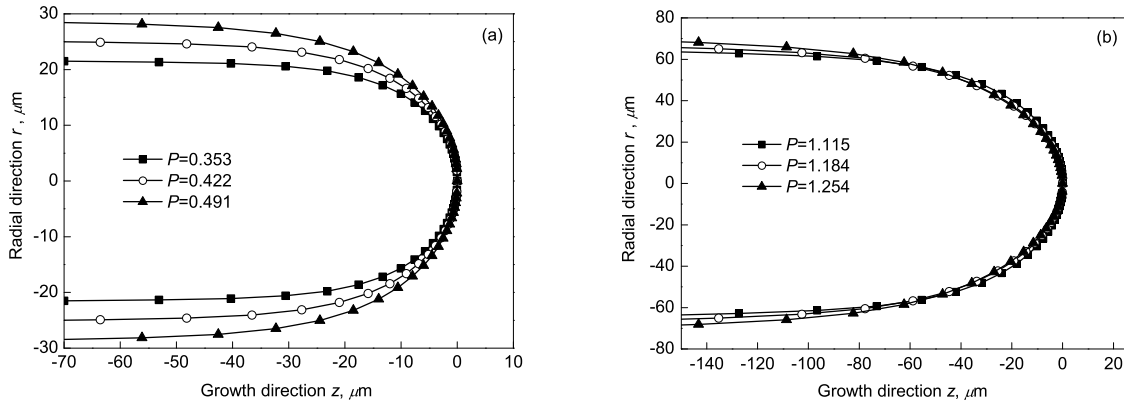


图 3 E_4 为 0.015 时不同间距 Péclet 数区间的自洽界面形状

Fig.3 Variations of self-consistent interface shape in different space Péclet numbers for $E_4=0.015$
(a) cellular interface (b) dendritic interface

变化曲线的平缓区间范围也同时增大, 即枝晶生长的间距选择范围增大. 也就是说, E_4 的增大, 有利于枝晶解的出现.

目前, 关于界面能各向异性对定向凝固枝晶尖端状态选择影响的研究很少, 也不存在包含界面能各向异性的定向凝固枝晶生长解析解, 因此, 本工作进一步探讨了界面能各向异性对定向凝固枝晶稳态生长的尖端状态选择的影响. 通常情况下, 可以采用一个与毛细长度、热扩散长度及枝晶生长的尖端半径相关的无量纲参数 σ , 即尖端稳定性参数, 来描述枝晶生长的尖端状态选择. Langer 等 (Langer and Müller-Krumbhaar, LM-K)^[26-28] 通过对枝晶尖端进行严格的线性分析, 提出了临界稳定性原理 (marginal stability, MS), 并认为, 枝晶尖端的生长是在特定的尖端稳定性参数 σ^* , 即临界尖端稳定性参数的控制下进行, 可以通过下式获得^[27]:

$$\sigma_{MS}^* = 2\Gamma D_L / [R^2 (VmC_{Tip}(k_0 - 1))] \quad (9)$$

式中, σ_{MS}^* 为基于 MS 原理定义的 σ^* , R 为枝晶生长的尖端半径, C_{Tip} 为界面前沿液相溶质浓度. 按照 Ivantsov-临界稳定性原理 (Ivantsov-marginal stability, IMS), 尖端稳定性参数与界面能各向异性无关, 枝晶尖端半径应等于平界面失稳的最短扰动波长, 这样, 定向凝固枝晶生长的 σ^* 也可以通过下式计算获得^[29,30]:

$$\sigma_{IMS}^* = \Gamma / [R^2 (mG_C - G_T)] \quad (10)$$

式中, σ_{IMS}^* 为基于 IMS 原理定义的 σ^* , G_C 和 G_T 分别为界面前沿的液相溶质浓度梯度和温度梯度. LM-K 临界稳定性原理认为 σ^* 约为 $1/(4\pi^2)$. 描述自由枝晶生长的 MSC 和 GIW 理论都认为 σ^* 受界面能各向异性的影响且与 E_4 存在幂指数关系^[2,6], 分别为 $\sigma_{MSC}^* = 0.81(15E_4)^{7/4}$, $\sigma_{GIW}^* = 1.09(15E_4)^{7/4}$, 其中, σ_{MSC}^* 为基于 MSC 理论定义的 σ^* , σ_{GIW}^* 为基于 GIW 理论定义的 σ^* . 图 4a 是用本模型模拟的结果按式 (9) 和

(10) 计算得到的不同 E_4 下的 σ^* , 并分别拟合得到

$$\sigma_{MS}^* = 0.0542(15E_4)^{0.3809} \quad (11)$$

$$\sigma_{IMS}^* = 0.0281(15E_4)^{0.3823} \quad (12)$$

图 4b 还给出了 MSC 和 GIW 理论的结果. 可以看到, σ_{MS}^* 和 σ_{IMS}^* 的拟合结果和 LM-K 临界稳定性理论预测值在同一数量级, 且二者结果相近; 而 MSC 和 GIW 理论的预测值比较大, 且对于界面能各向异性依赖关系强于 σ_{MS}^* 和 σ_{IMS}^* 所预测的结果. 这主要是由于, 在定向凝固条件下, 枝晶以列状晶的形式生长, 尖端距离较近, 相邻枝晶间的溶质扩散场将会出现重叠, 进而在相邻枝晶间产生相互作用, 对枝晶尖端状态产生重要影响, 从而削弱了界面能的作用, 导致定向凝固枝晶生长的 σ^* 对界面能各向异性的依赖关系相比 MSC 和 GIW 理论预测的要小. Kurz 和 Fisher^[7] 把 LM-K 临界稳定性条件应用于 Fisher 枝晶稳态扩散解^[12] 中, 便可得到枝晶稳态生长的 KF 尖端半径理论模型, 按同样的方式把 MSC 和 GIW 理论分别应用于 Fisher 枝晶扩散解^[12], 同样可以得到包含界面能各向异性的枝晶尖端半径表达式

$$R_{MSC} = 1.1111 \left(\frac{\Gamma D_L}{V k_0 \Delta T_0} \right)^{0.5} E_4^{-0.875} \quad (13)$$

$$R_{GIW} = 0.9578 \left(\frac{\Gamma D_L}{V k_0 \Delta T_0} \right)^{0.5} E_4^{-0.875} \quad (14)$$

式中, $\Delta T_0 = mC_0(1 - k_0)/k_0$ 为溶质浓度为 C_0 时相图液相线和固相线温度差, R_{MSC} 和 R_{GIW} 分别为基于 MSC 和 GIW 理论定义的枝晶生长尖端半径.

根据模型计算的结果, 并把式 (11) 和 (12) 应用于 Fisher 枝晶扩散解^[12], 同样, 可得到基于本工作模型的尖端半径表达式

$$R_{MS} = 3.5550 \left(\frac{\Gamma D_L}{V k_0 \Delta T_0} \right)^{0.5} E_4^{-0.1912} \quad (15)$$

$$R_{IMS} = 2.5646 \left(\frac{\Gamma D_L}{V k_0 \Delta T_0} \right)^{0.5} E_4^{-0.1905} \quad (16)$$

式中, R_{MS} 和 R_{IMS} 分别为基于 MS 和 IMS 原理定义的枝晶生长尖端半径.

可见, 随着 E_4 增大, 尖端半径呈现负指数减小. 进一步研究界面能各向异性对定向凝固枝晶尖端半径的影响, 图 5a 给出了 KF 模型及经微观可解性理论、整体界面波理论修正的 KF 模型 (式 (13) 和 (14)) 所预测的枝晶尖端半径随 E_4 的变化曲线, 并与本工作模型模拟得到的尖端半径进行了比较. 图 5b 则进一步比较了本工作所修正的 KF 模型 (式 (15) 和 (16)). 类似 KF 尖端半径理论模型, 式 (13)—(16) 都是把不同的尖端稳定性条件作为枝晶生长的另一个制约条件应用于 Fisher 枝晶稳态扩散解^[12]后得到的, σ^* 直接影响着尖端半径的大小. 尽管耦合了临界稳定性条件的 KF 理论模型没有考察界面能各向异性因素, 但是, KF 模型的预测结果与本文模型的模拟结果还是相当接近; 而经 MSC 和 GIW 理论修正的 KF 模型尽管与本文模型模拟得到的枝晶尖端半径的变化趋势相同, 但偏差较大; 而基于本文模型修正后的 KF 模型则与本文数值自洽模型的计算结果吻合性明显提高, 特别是式 (16)

和本模型模拟的结果在变化趋势和大小上相当接近. 从前文分析可知, 定向凝固枝晶生长的尖端状态是由界面能和枝晶列间相邻枝晶溶质扩散场的相互作用共同决定, 尖端半径作为重要的特征尺度, 必然受二者的共同影响, 而 MSC 和 GIW 理论并没有包含列状枝晶间相邻枝晶单元扩散场相互作用的因素, 这就可能是其预测结果与本数值模型模拟结果偏差较大的原因所在.

界面前沿过冷度是枝晶生长的驱动力. 由前文可知, E_4 的增大, 会使枝晶尖端界面能效应 $\Gamma\zeta$ (式 (8)) 减小. 界面能是稳定尖端半径的主要因素之一, 因此, 界面能稳定性效应的减小将导致枝晶尖端半径的减小, 并使尖端附近浓度场的分布发生改变, 进而影响界面前沿的过冷度. 图 6 给出了不同界面能各向异性下, 稳态枝晶生长时界面前沿液相溶质浓度和尖端过冷度的变化. 计算发现, 由于界面弯曲引起界面压力所致的曲率过冷在总的过冷度中所占得比重非常小, 动力学过冷度也很小, 尖端过冷度的变化主要是由成分过冷的变化引起的. E_4 的增大, 导致枝晶生长时尖端半径减小, 小的尖端半径更有利于界面前沿溶质的横向扩散, 使界面前沿溶质浓度降低, 从而使界面前沿的溶质过冷度减小, 最终引起尖端过冷度的减小. 图

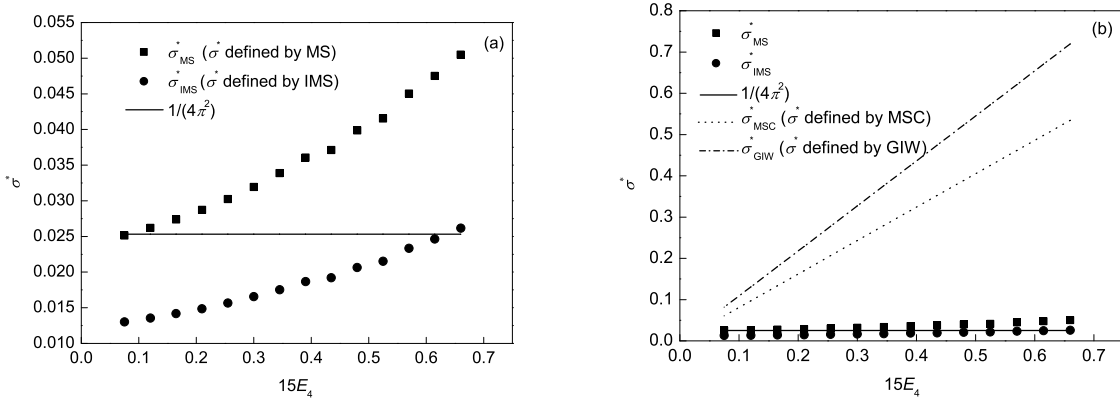


图 4 不同 E_4 下 SCN-1.0%ACE 枝晶生长的临界尖端稳定性参数 (σ^*) 变化

Fig.4 Variations of dendritic tip marginal stability parameter (σ^*) against E_4 for the dendritic growth of SCN-1.0%ACE

(a) σ^*_{MS} , σ^*_{IMS} and $1/(4\pi^2)$ (b) σ^*_{MS} , σ^*_{IMS} , $1/(4\pi^2)$, σ^*_{MSC} and σ^*_{GIW}

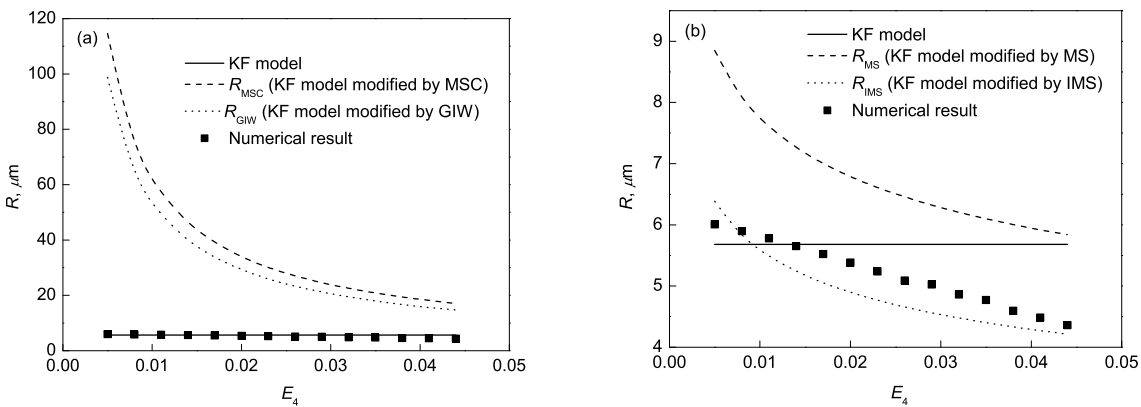


图 5 不同 E_4 下 SCN-1.0%ACE 枝晶生长的尖端半径变化

Fig.5 Variations of dendritic tip radius (R) against E_4 for the dendritic growth of SCN-1.0%ACE

(a) R_{MSC} , R_{GIW} , KF model and the numerical result (b) R_{MS} , R_{IMS} , KF model and the numerical result

7 给出了不同界面能各向异性下, 界面前沿的温度变化. 可以看出, E_4 的增大, 导致界面前沿的温度升高, 界面前沿过冷度减小, 枝晶尖端向热端靠近.

关于凝固条件对一次枝晶间距的影响, 在理论分析和实验上都已经有研究, 然而, 大多数的研究 [7-9] 都是在没有考察界面能各向异性的情况下, 却能获得较好的结果. 为了弄清相邻枝晶间溶质扩散场的相互作用. 图 8 给出了在 $V=10 \mu\text{m/s}$, $G=4.7 \text{ K/mm}$, $E_4=0.015$ 时, 不同一次间距枝晶生长时周期性对称边界上的液相溶质浓度变化曲线, 箭头所指的位置为尖端的位置 (尖端位置处网格划分密). 在列状晶生长时, 相邻枝晶主轴会发生相互作用, 由图可知, $\lambda_1=100 \mu\text{m}$ 的枝晶主轴与 $\lambda_1=120 \mu\text{m}$ 的枝晶主轴相邻时, 若以前者尖端位置高度处做一条竖直垂线, 与后者的周期性对称边界溶质浓度曲线相交, 可以发现, 后者的尖端附近的周期性对称边界溶质浓度大于前者尖端附近的周期性对称边界浓度, 则 $\lambda_1=120 \mu\text{m}$ 的枝晶主轴在生长时会向 $\lambda_1=100 \mu\text{m}$ 的枝晶尖端排出溶质, 从而导致间距较小的枝晶被淹没, $\lambda_1=$

$100 \mu\text{m}$ 的枝晶主轴在生长中并不能稳定存在. 同理不难得出, $\lambda_1=120 \mu\text{m}$ 的枝晶与 $\lambda_1=130 \mu\text{m}$ 的枝晶相邻时, $\lambda_1=120 \mu\text{m}$ 的枝晶将被淹没. 但是当 $\lambda_1=130 \mu\text{m}$ 的枝晶与 $\lambda_1=140 \mu\text{m}$ 的枝晶相邻时, $\lambda_1=130 \mu\text{m}$ 的枝晶尖端附近的周期性对称边界的溶质浓度比 $\lambda_1=140 \mu\text{m}$ 枝晶尖端附近的高, 这样就将发生溶质由小间距枝晶尖端向大间距枝晶尖端附近迁移的现象, $\lambda_1=130 \mu\text{m}$ 的枝晶生长时界面前沿的溶质得到疏散而加速生长, $\lambda_1=140 \mu\text{m}$ 的枝晶尖端由于溶质的富集而减速, 最终两者稳定存在而趋于均匀化. 可以看到, 这种条件下, 稳态枝晶的一次间距下限应在 $130 \mu\text{m}$ 左右. 图 9 进一步给出了在 $G=4.7 \text{ K/mm}$, V 分别为 $10, 20$ 和 $40 \mu\text{m/s}$ 时, 不同 E_4 下一次间距的选择情况. 可以看到, 相比一次间距的选择对外部凝固条件存在的很强依赖关系, 界面能各向异性对枝晶的一次间距选择的影响较小, 只有在 E_4 很大的时候, 稳态生长的一次枝晶才会随着 E_4 的增大而略微增加. 界面能各向异性是通过 Gibbs-Thomson 方程引入的, 它对界面及其附近的溶质分布有强烈的影响, 但是这种影响有很强的局域性, 特别是由于尖端附近的曲率大, 同时变化较大, 较强的

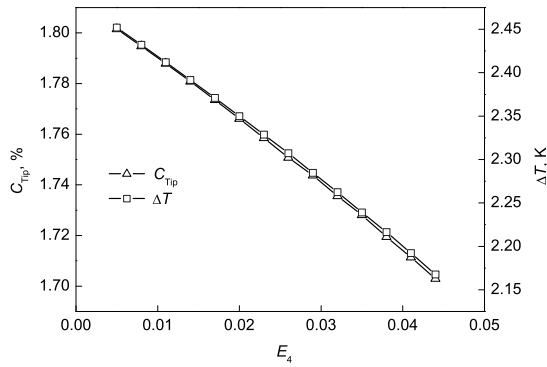


图 6 不同 E_4 下 SCN-1.0%ACE 枝晶生长时界面前沿的溶质浓度 (C_{Tip}) 和过冷度 (ΔT) 变化
 Fig.6 Variations of solute concentration (C_{Tip}) and ΔT in front of the interface against E_4 for the dendritic growth of SCN-1.0%ACE

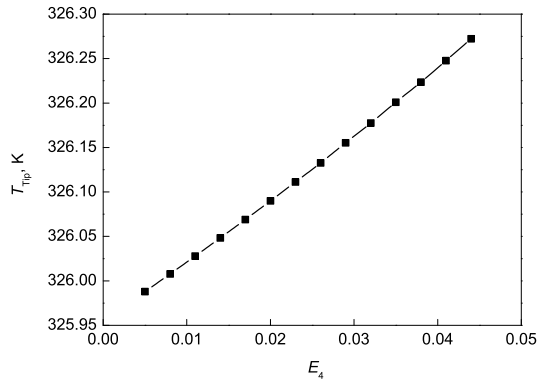


图 7 不同 E_4 下 SCN-1.0%ACE 枝晶生长时界面前沿的温度变化
 Fig.7 Variations of temperature in front of the interface (T_{Tip}) against E_4 for the dendritic growth of SCN-1.0%ACE

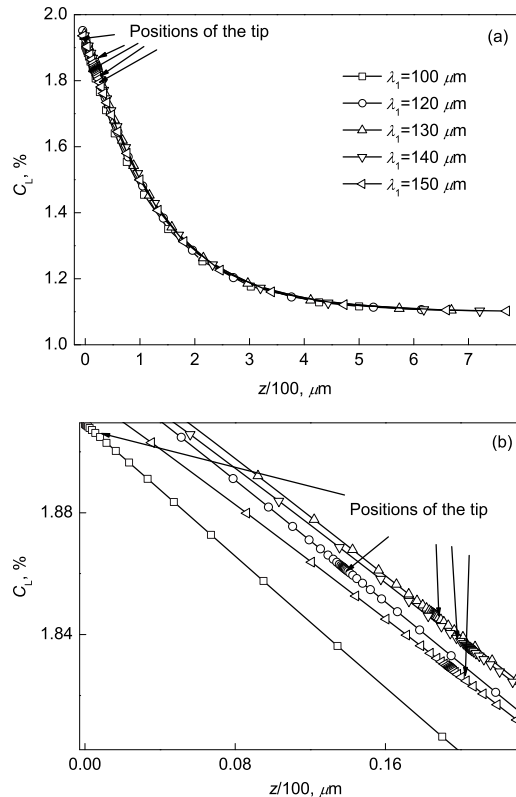


图 8 SCN-1.0%ACE 定向凝固时, 在不同一次间距下周期部分对称边界上的液相溶质分布
 Fig.8 Variations of the liquid composition (C_L) against position with different primary spaces at the edge of the dendrite of the SCN-1.0%ACE in the unidirectional solidification
 (a) for a large range
 (b) enlarged plot of Fig.8a around the tip

界面能各向异性影响主要局限于枝晶尖端附近的溶质扩散场。从前文的分析可知，枝晶间的相互作用主要通过枝晶之间周期性对称边界的溶质分布来体现，周期性边界和枝晶尖端相距较远，界面能各向异性对枝晶生长产生强烈影响的区域主要局限于尖端界面附近，则界面能各向异性对周期性对称边界溶质分布及温度场影响就小，导致界面能各向异性对枝晶稳态生长的一次间距选择的影响也较小。这也许就是以往研究枝晶生长稳态一次间距时，在没有考察界面能各向异性的情况下，却能得出比较好的结果的内在原因。

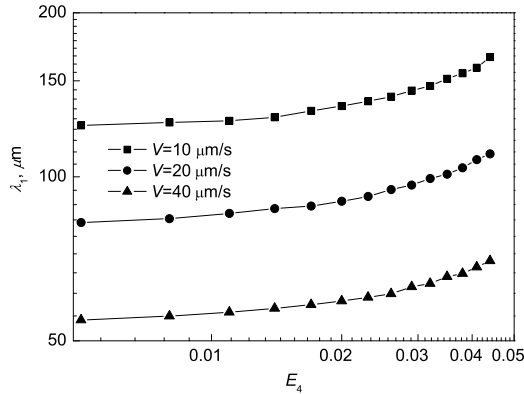


图 9 SCN-1.0%ACE 定向凝固时不同 E_4 下的枝晶一次间距
Fig.9 Variations of primary dendritic spacing (λ_1) against E_4 of the SCN-1.0%ACE in the unidirectional solidification under different growth velocities (V)

3 结论

(1) 定向凝固时，对于给定的凝固条件下，本数值自洽模型存在 2 组不同间距 Péclet 数范围的连续解，较小间距 Péclet 数解区间对应是胞晶生长，较大间距 Péclet 数解区间对应是枝晶生长；界面能各向异性的增大，使枝晶生长的间距 Péclet 数解范围增大，枝晶生长的界面前沿过冷度降低，利于枝晶解的出现。

(2) 定向凝固枝晶生长是在枝晶生长的尖端临界稳定性参数 σ^* 的支配下进行的， σ^* 与界面能各向异性参数 E_4 成一定幂指数关系；经 MSC 和 GIW 理论改进的 KF 模型与模拟结果存在较大偏差，这是由于强制性定向凝固生长是由界面能和枝晶间扩散场的相互作用共同决定；按 IMS 原理，基于本工作修正的 KF 模型包含界面能各向异性的影响，表达式如下：

$$R_{IMS} = 2.5646 \left(\frac{\Gamma D_L}{V k_0 \Delta T_0} \right)^{0.5} E_4^{-0.1905}$$

$$\Delta T_0 = m C_0 (k_0 - 1) / k_0$$

且其预测值与本自洽模型模拟结果吻合很好；随界面能各向异性的增大，尖端半径减小，从而利于界面前沿溶质的

扩散，使得界面前沿的溶质浓度和过冷度减小，固相向热端方向移动。

(3) 枝晶生长时稳态一次间距由枝晶主轴间的相互作用决定，界面能各向异性对枝晶的生长影响较大的区域局限于尖端附近，从而对主轴间的相互作用影响较小，对稳态生长的一次间距影响较小。

参考文献

- [1] Kessler D A, Koplik J, Levine H. *Adv Phys*, 1988; 37: 255
- [2] Kessler D A, Levine H. *Phys Rev*, 1986; 33B: 7867
- [3] Barbieri A, Hong D C, Langer J S. *Phys Rev*, 1987; 35A: 1802
- [4] Xu J J. *Phys Rev*, 1991; 43A: 930
- [5] Xu J J, Pan Z X. *J Cryst Growth*, 1993; 129: 666
- [6] Xu J J. *Phys Rev*, 1996; 53E: 5051
- [7] Kurz W, Fisher D J. *Acta Metall*, 1981; 29: 11
- [8] Hunt J D, McCartney D G. *Acta Metall*, 1987; 35: 89
- [9] Trivedi R. *J Cryst Growth*, 1980; 48: 93
- [10] Langer J S, Müller-Krumbhaar H. *Acta Metall*, 1978; 26: 1681
- [11] Müller-Krumbhaar H, Langer J S. *Acta Metall*, 1978; 26: 1697
- [12] Chalmers B. *Principle of Solidification*. New York: Wiley, 1964: 105
- [13] Shan B W, Huang W D, Lin X, Wei L. *Acta Metall Sin*, 2008; 40: 1042
(单博伟, 黄卫东, 林鑫, 魏雷. 金属学报, 2008; 40: 1042)
- [14] Utter B, Bodenschatz E. *Phys Rev*, 2005; 72E: 011601
- [15] Li C X, San J C, Guo T M, Wang H, Wang F X. *J Synthetic Cryst*, 2005; 34: 870
(李晨希, 伞晶超, 郭太明, 王宏, 王凤翔. 人工晶体学报, 2005; 34: 870)
- [16] Wang Z J. *PhD Dissertation*, Northwestern Polytechnical University, Xi'an, 2009
(王志军. 西北工业大学博士学位论文, 西安, 2009)
- [17] Lu S Z, Hunt J D. *J Cryst Growth*, 1992; 123: 17
- [18] Lin X, Li Y M, Liu Z X, Li T, Huang W D. *Sci Technol Adv Mater*, 2001; 2: 293
- [19] Patankar S V. *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. London: Hemisphere Publishing Corp, 1970: 30
- [20] McCartney D G, Hunt J D. *Metall Trans*, 1984; 15A: 983
- [21] Lipton J, Glicksman M E, Kurz W. *Metall Trans*, 1987; 18A: 341
- [22] Somboonsuk K, Mason J T, Trivedi R. *Metall Trans*, 1984; 15A: 967
- [23] Burden M H, Hunt J D. *J Cryst Growth*, 1974; 22: 109
- [24] Karma A, Sarkissian A. *Metall Mater Trans*, 1996; 27A: 635
- [25] Hunziker O, Vandyoussefi M, Kurz W. *Acta Mater*, 1998; 46: 6325
- [26] Langer J S. *Rev Mod Phys*, 1980; 52: 1
- [27] Warren J A, Langer J S. *Phys Rev*, 1993; 47E: 2702
- [28] Langer J S, Müller-Krumbhaar H. *J Cryst Growth*, 1977; 42: 11
- [29] Kurz W, Fisher D J. *Acta Metall*, 1981; 29: 11
- [30] Trivedi R. *J Cryst Growth*, 1980; 48: 93