

相场法模拟界面能各向异性对枝晶生长行为的影响*

李俊杰 王锦程** 杨根仓

西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 西安 710072

摘要 采用修正的相场模型, 模拟了纯物质在深过冷条件下界面能各向异性对晶体生长行为的影响. 结果表明, 各向异性模数很小时, 枝晶形态为典型的海藻晶; 当各向异性模数较大但仍小于临界值(1/15)时, 枝晶形态为光滑枝晶; 而当各向异性模数大于该临界值后, 某些方向的生长将消失, 呈现为棱面枝晶形态. 当各向异性模数小于临界值(1/15)时, 枝晶尖端生长速度随各向异性的增强而线性增大; 当各向异性模数大于0.1后, 枝晶尖端生长速度增大、速率减小并逐渐趋于定值. 强各向异性与弱各向异性下的情况类似, 枝晶尖端生长速度都表现出随界面厚度参数的减小而逐步收敛的趋势.

关键词 相场法 深过冷 各向异性 枝晶生长

固/液界面能各向异性是影响晶体生长形态演化与微观组织选择的一个非常重要的参数. 对自由枝晶来讲, 形成稳定的枝晶尖端形态的必要条件就是具有一定的界面能各向异性, 同时其生长方向和特征长度(如枝晶尖端半径, 枝晶间距等)也与界面能各向异性密切相关. 当各向异性相对较弱时, 晶体的平衡形态是光滑的, 即界面可以沿所有的方向生长, 随着各向异性的增强, 一些特定的高能量方向的生长将消失, 晶体的平衡形态将出现棱角或小平面. 近年来, 相场法已成为模拟凝固过程中组织演化的一种重要手段^[1-10]. 相场模型中, 通过把界面能表示为界面法向与特定方向之间夹角的函数来考虑界面能各向异性的作用. 在强界面能各向异性情况下, 界面包含了某些行将消失的生长方向, 它在热力学上以及数值计算过程中都是不稳定的, 因此必须对界面能函数进行修正. 目前, 相场法模拟凝固微观组织演化的研究工作在单相合金^[3,4]、多相合金^[5,6]、多晶组织^[7]、流场作用^[8,9]等方面均已取得了重大进展, 但上述研究都是针对弱各向异性的非小平面生长展开的, 而对于强各向异性下的小

平面生长的研究还不多见. 直到最近, Eggleston等^[10]才提出了强各向异性下的修正方法, 并通过对等温单一相场模型的修正, 模拟了强各向异性下初生固相的形态. Karma等^[2]提出的薄界面极限下的相场模型具有重要的理论和实用价值, 该模型不仅大大提高了求解效率, 而且可以对枝晶稳态生长行为进行定量模拟, 本文将根据 Eggleston等^[10]提出的调整界面能系数的方法, 对该模型进行修正, 研究纯物质在深过冷条件下, 界面能各向异性对晶体生长形貌的影响以及枝晶生长稳态行为与各向异性之间的关系.

1 相场模型

纯物质非等温凝固相场模型的基本方程采用 Karma等^[2]提出的薄界面极限下的相场模型, 定义相场变量 $\phi=1$ 代表固相, $\phi=-1$ 代表液相, $-1 < \phi < 1$ 时代表界面. 温度场及相场控制方程分别为

$$\partial_t u = D \nabla^2 u + \frac{1}{2} \frac{\partial \phi}{\partial t}, \quad (1)$$

2005-04-12 收稿, 2005-05-25 收修改稿

* 国家自然科学基金资助项目(批准号: 50401013, 50271057)

** 通讯作者, E-mail: jchwang@nwpu.edu.cn

$$\begin{aligned} \tau(\theta)\partial_t\phi = & [\phi - \lambda u(1 - \phi^2) - A_n r_n](1 - \phi^2) + \\ & \nabla \cdot [\epsilon(\theta)^2 \nabla \phi] + \partial_x \left(|\nabla \phi|^2 \epsilon(\theta) \frac{\partial \epsilon(\theta)}{\partial (\partial_x \phi)} \right) + \\ & \partial_y \left(|\nabla \phi|^2 \epsilon(\theta) \frac{\partial \epsilon(\theta)}{\partial (\partial_y \phi)} \right), \end{aligned} \quad (2)$$

其中 $\epsilon(\theta) = \epsilon_0 \alpha_s(\theta)$, $\tau(\theta) = \tau_0 \alpha_s(\theta)^2$, u 为无量纲温度, D 为热扩散率, λ 为相场与温度场耦合系数, $A_n r_n$ 为噪声项, ϵ_0 和 τ_0 分别为与界面厚度和界面原子堆积特征时间有关的参数, 各向异性因子 $\alpha_s(\theta) = 1 + r \cos 4\theta$, θ 为界面法向与 x 轴之间的夹角, 可由式 $\theta = \arctan(\phi_y/\phi_x)$ 确定, r 为各向异性模数. 以上相场及温度场控制方程中的参量都已无量纲化.

由 Gibbs-Thomson 方程可知 $(\sigma(\theta) + \sigma''(\theta))/R(\theta) = f^l - f^s$, 式中 f^l , f^s 分别为液相和固相的自由能密度, $\sigma(\theta) = \sigma_0 \alpha_s(\theta)$ 为界面能, $R(\theta)$ 为界面曲率半径. 对过冷熔体的凝固过程, 该方程右端恒为正, 左端 $\sigma(\theta) + \sigma''(\theta) = \sigma_0(1 - 15r \cos 4\theta)$, 所以当 $r \leq 1/15$ 时左端恒为正, 界面的所有生长方向都是稳定的, 界面光滑连续; 当 $r > 1/15$ 时, 在某些生长方向上左端将为负, 这些就是要消失的界面生长方向, 界面不再连续而将出现棱角. 此时要对上述相场模型进行修正, 根据 Eggleston 等^[10] 提出的修正方法得

$$\tilde{a}_s(\theta) = \begin{cases} a_s(\theta), & \theta_m \leq |\theta| \leq \pi/4, \\ \frac{a_s(\theta_m) \cos(\theta)}{\cos(\theta_m)}, & |\theta| < \theta_m \end{cases}, \quad (3)$$

其中 θ_m 为生长停止的范围, 在 $|\theta| \leq \theta_m$ 的范围内生长都将停止, θ_m 可由下式给出,

$$\frac{d}{d\theta} \left(\frac{\cos \theta}{a_s(\theta)} \right) = 0, \quad (4)$$

将 $\tilde{a}_s(\theta)$ 代入(2)式得新的相场控制方程如下:
当 $\theta_m \leq |\theta| \leq \pi/4$ 时

$$\begin{aligned} \tau_0 \alpha_s(\theta)^2 \partial_t \phi = & [\phi - \lambda u(1 - \phi^2) - A_n r_n](1 - \phi^2) + \epsilon_0^2 \nabla \cdot \\ & [a_s(\theta)^2 \nabla \phi] - \partial_x (\epsilon_0^2 a_s(\theta) a'_s(\theta) \phi_y) + \\ & \partial_y (\epsilon_0^2 a_s(\theta) a'_s(\theta) \phi_x), \end{aligned} \quad (5)$$

当 $|\theta| < \theta_m$ 时

$$\begin{aligned} \frac{\tau_0 \alpha_s(\theta_m)^2 \cos^2(\theta)}{\cos^2(\theta_m)} \partial_t \phi = & [\phi - \lambda u(1 - \phi^2) - A_n r_n] \cdot \\ & (1 - \phi^2) + \left(\frac{\epsilon_0 a_s(\theta_m)}{\cos(\theta_m)} \right)^2 \phi_{xx}. \end{aligned} \quad (6)$$

2 计算结果和讨论

2.1 模型的数值求解

对相场方程(1), (5), (6)采用基于均匀网格的显式有限差分进行求解, 初始网格节点数为 200×200 , 随着计算的进行, 枝晶不断长大, 为保证温度场始终有足够的热扩散长度, 网格节点数不断增加. 在计算区域边界采用 Neumann 边界条件. 基本参数选取为 $\epsilon_0 = 1, \tau_0 = 1, \lambda = 0.6359, d_0 = 0.139, D = 4, \Delta x = \Delta y = 0.4, \Delta t = 0.004$, 计算了无量纲过冷度 $\Delta u = -0.65$ 时, 各向异性模数 $r = 0.01, 0.015, 0.05, 0.15, 0.2$ 下的枝晶生长演化行为. 为了模拟出发达的二次枝晶, 在相场方程中还可引入噪声.

2.2 界面厚度参数的选取

Karma 等^[2]进行了相场模型的薄界面极限渐近分析, 通过补偿由大界面厚度所产生的非物理性影响, 使其相场模型中界面厚度参数可以大于毛细长度, 从而大大提高了计算速度. 于艳梅等^[11]研究了热物性参数对界面厚度取值的影响, 提出界面厚度参数应随各向异性的增大而减小, 否则会带来较大的误差噪声, 而使结果失真. 本文在强各向异性的模拟中验证了这一论述, 图1为各向异性模数 $r = 0.25$ 时不同界面厚度参数下的模拟结果, 模拟过程中未引入噪声项, 但可以发现界面厚度参数 $\epsilon_0 = 1$

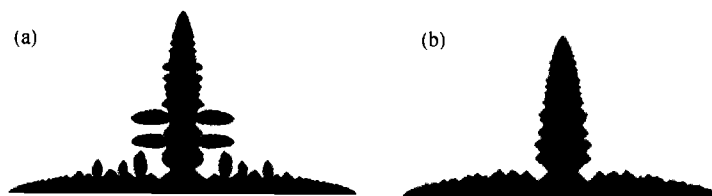


图1 不同各向异性模数时不同界面厚度参数的模拟结果

(a) $\epsilon_0 = 1$; (b) $\epsilon_0 = 0.6$

时, 主轴侧向长出了明显的二次分枝, 这是由数值计算误差引起的扰动所造成. 如不要求精确的计算, 这是可以接受的, 若要作准确的定量分析(如求枝晶尖端生长速度), 则必须减小界面厚度参数, 但这样会使计算速度降低. 图1(b)为减小界面厚度参数后($\epsilon_0=0.6$)的模拟结果, 可见此时已无明显的二次分枝, 数值误差得到了有效控制, 而枝晶主轴上侧向的突起是由于生长方向不连续而引起的棱角, 并非数值误差造成的, 这与 Kasajima 等^[12]的模拟结果是一致的.

Karma 等^[2]研究表明在薄界面极限相场模型中, 枝晶尖端生长速度随界面厚度参数 ϵ_0 与毛细长度 d_0 比值的减小而趋于收敛, 最终与界面厚度参数的选取无关. 由于这是在弱各向异性下的结论, 因此在研究生长速度前, 首先需要确定用修正的模型进行强各向异性计算时, 枝晶尖端生长速度是否同样收敛. 图2是各向异性模数为 0.1, 0.15, 0.2 时, 无量纲生长

速度随界面厚度参数减小的变化关系, 可以看到 $\epsilon_0/d_0 < 5$ 时, 速度开始收敛. 在研究枝晶尖端生长行为时即按这一原则选取界面厚度参数.

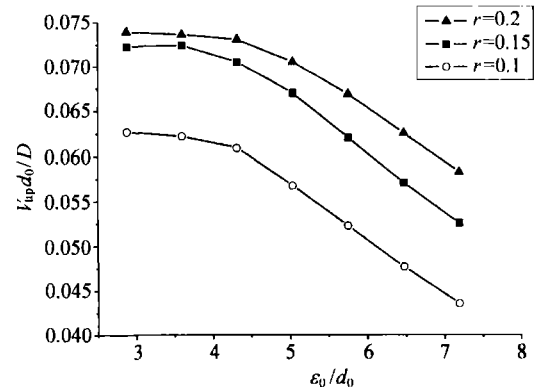


图2 不同各向异性模数时无量纲尖端速度随 ϵ_0/d_0 的变化

2.3 不同各相异性下的晶体形态演化

图3为不同各向异性模数($r=0.01, 0.015, 0.05, 0.15, 0.25$)

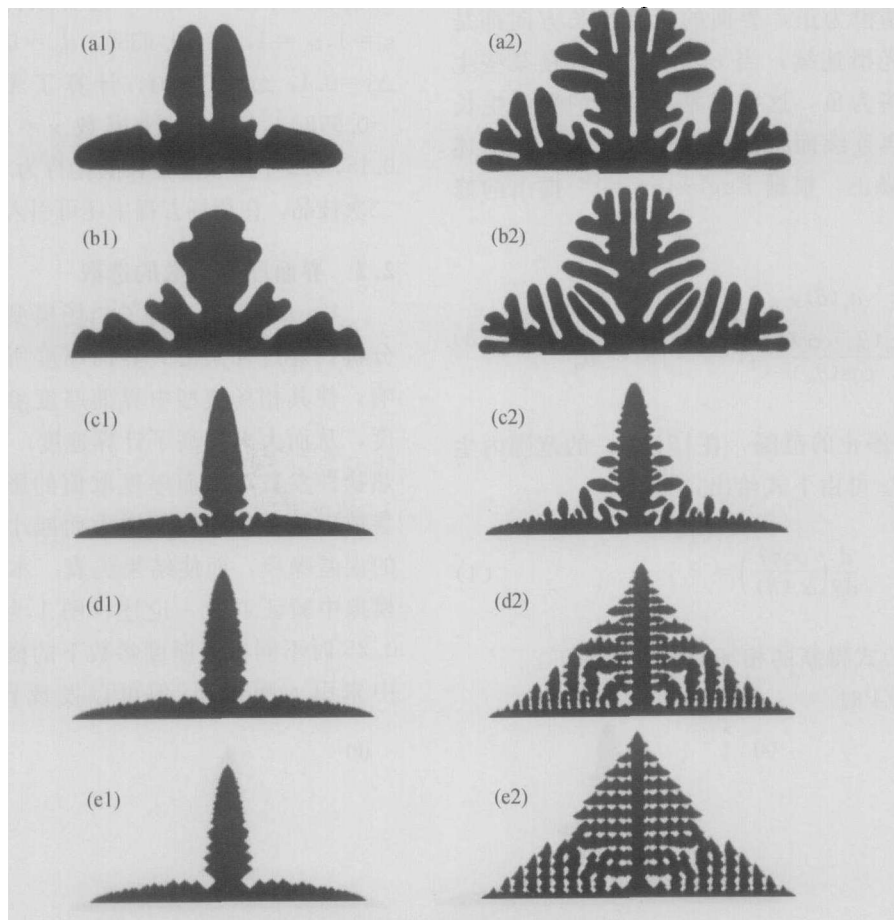


图3 不同各向异性时枝晶生长情况

(a1) -- (e1) 无噪声; (a2) -- (e2) 加入噪声; (a) $r=0.01$; (b) $r=0.015$; (c) $r=0.05$; (d) $r=0.15$; (e) $r=0.25$

0.15, 0.25)下的模拟结果. 其中左半部((a1), (b1), (c1), (d1), (e1))未加噪声项, 右半部((a2), (b2), (c2), (d2), (e2))加入噪声项.

模拟结果表明, 当各向异性较弱时, 枝晶尖端将产生分叉, 生长成典型的海藻状(seaweed)(图3(a2), (b2)), 且各向异性越弱尖端越易产生分叉. 对比有无噪声的形貌可发现, 噪声引发侧向分枝, 从图3(b1), (b2)还可发现噪声会促进尖端的分叉. 随着各向异性的增强, 枝晶尖端将不再分叉, 此时枝晶形貌是光滑连续的(图3(c2)), 加入噪声引发的二次分枝也同样如此. 在没有人为加入噪声时(图3(c1)), 枝晶仅沿主轴方向生长, 无二次分枝产生, 这也说明模拟过程中计算误差的扰动非常小, 对计算结果基本无影响. 当各向异性模数 r 大于临界值 $1/15$ 后, 界面的生长不再光滑连续, 某些方向的生长消失, 界面产生棱角, 形成了典型的小平面枝晶形貌(图3(d2), (e2)), 可以发现此时主枝和侧向分枝的尖端都出现了棱角. 图4为 Aoyama 等^[13]通过实验得到的大过冷条件下硅的小平面枝晶形貌, 本文模拟获得的结果与其相似, 都具有典型的棱角特征. 由于本模拟是在大过冷条件下进行的(无量纲过冷度 $\Delta u = -0.65$), 因此小平面的形貌为棱面枝晶, 而不是常见的小过冷下的四方形.

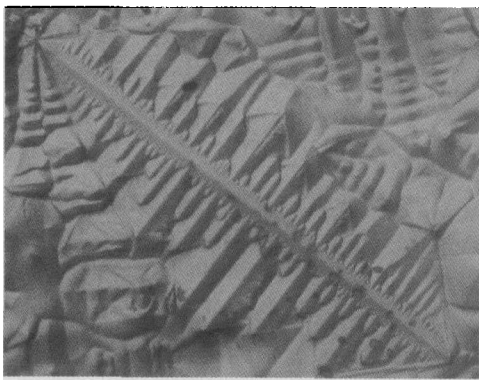


图4 Aoyama 等^[13]实验中观测到的过冷度 177 K 下硅的枝晶形貌

2.4 各向异性对枝晶尖端稳态生长行为的影响

尖端曲率半径是描述非小平面枝晶尖端大小的重要参量, 但对小平面枝晶, 其尖端附近生长不连

续, 界面不再是光滑连续的曲面, 因此不能再用尖端半径来描述. 本文采用 Kasajima 等^[12]提出的特征长度 L 来表征小平面枝晶尖端大小, 如图5所示.

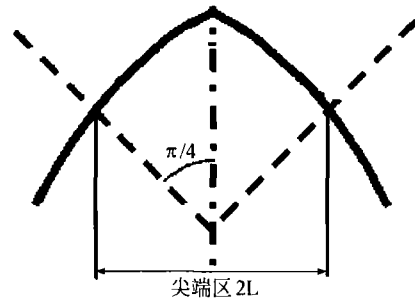
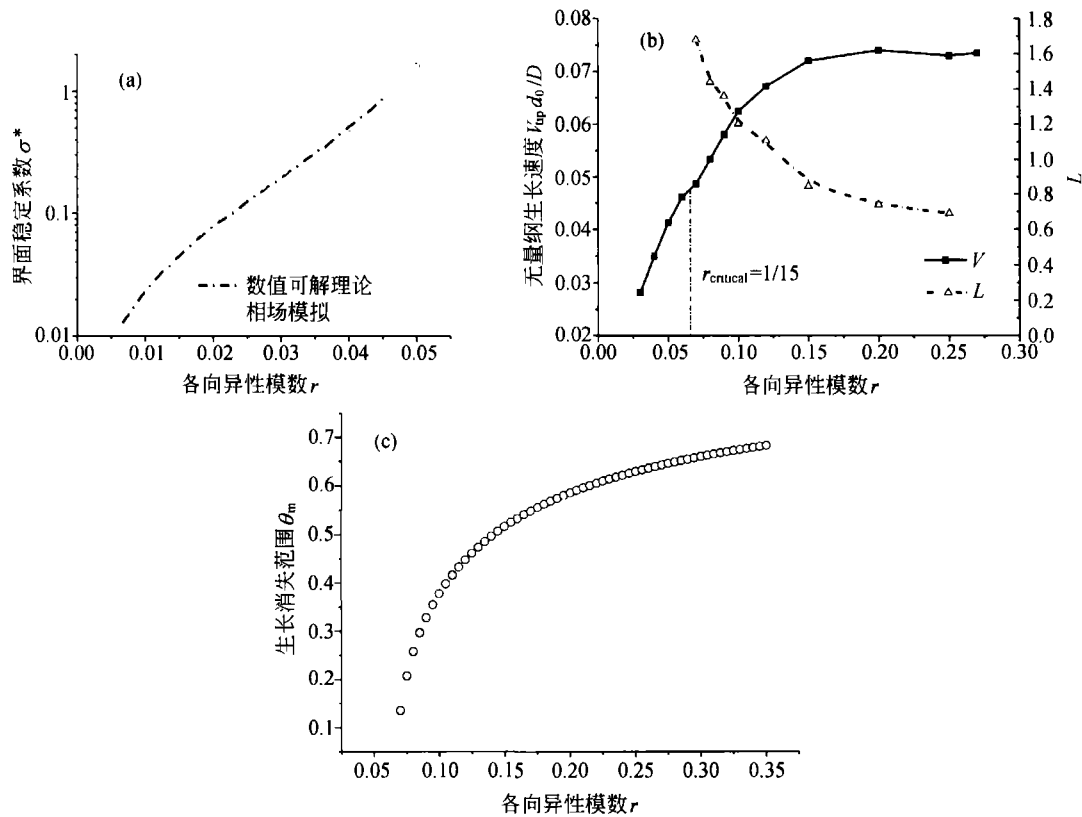


图5 Kasajima 等^[12]提出的表征小平面的特征长度 L

研究界面能各向异性模数 r 对枝晶尖端稳态行为影响的结果见图6. 图6(a)为界面稳定系数 σ^* 与各向异性模数 r 的关系. 经典微观可解理论预测 $\sigma^* \propto r^{1.75}$, 但这是在过冷度和各向异性模数均趋于零时的结论, 本文模拟的条件显然与之不同, 两者不能进行比较. Karma 等^[14]给出了大过冷度 ($\Delta u = -0.45$) 下微观可解理论的数值解(图6(a)中虚线所示), 本文通过相场法求解出了相同过冷度时 σ^* 随 r 的变化关系(图6(a)中圆圈所示), 可以发现模拟结果与微观可解理论数值解基本吻合. 图6(b)中实线为枝晶尖端无量纲生长速度随各向异性模数的变化关系, 发现在各向异性较小时, 枝晶尖端生长速度随各向异性增大而线性增大. 在临界值 $1/15$ 附近有一个小的转折, 这与某些方向的生长开始消失有关. 当各向异性模数大于 0.1 时增速减慢, 而后逐渐趋于一个定值. 图6(c)为生长消失范围随各向异性的变化关系, 可以看出随着各向异性的增强, 生长消失范围不断变大, 但增大的速率在不断减小, 当 $r > 0.1$ 后减小更加显著, 不再随各向异性的增长而发生较大变化, 这可能是各向异性模数大于 0.1 后生长速度变化减慢的原因. 在相同的过冷度下, 当尖端生长速度趋于稳定时, 其尖端的大小也应趋于稳定, 图6(b)中虚线所示特征长度 L 随 r 的变化关系恰好验证了这一点.

图6 各向异性模数 r 对尖端稳态行为的影响

(a) r 对界面稳定系数 σ^* 的影响; (b) r 对无量纲生长速度 $V_{tip}d_0/D$ 和尖端特征长度 L 的影响; (c) r 对生长消失范围 θ_m 的影响

3 结论

1. 计算结果表明,修正的相场模型可以很好地刻画不同界面能各向异性条件下的枝晶生长行为。在深过冷条件下,当各向异性模数很小时,枝晶形态为海藻晶;各向异性模数再增大但仍小于临界值时,生长形态为光滑的枝晶;当大于临界值后,某些方向的生长将消失,界面将出现棱角,生长形态为棱面枝晶。

2. 当各向异性模数较小时,枝晶尖端生长行为与微观可解理论相符,枝晶尖端生长速度随各向异性模数的增大而线性增大;而当各向异性模数大于临界值时,增速出现一个小的转折,当各向异性模数大于 0.1 时,增速减小,逐渐趋于定值,枝晶尖端大小也趋于稳定。

3. 在强各向异性条件下,枝晶尖端生长速度随界面厚度参数的减小而趋于收敛。

参 考 文 献

- 1 Wheeler A A, Murray B T, Schaefer R J. Computation of dendrites using a phase field model. *Physica D*, 1993, 66(2): 243
- 2 Karma A, Rappel W J. Quantitative phase-field modeling of dendritic growth in two and three dimensions. *Phys Rev E*, 1998, 57(4): 4323
- 3 Warren J A, Boettinger W J. Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase-field method. *Acta Metall Mater*, 1995, 43(2): 689
- 4 Conti M. Solidification of binary alloys; Thermal effects studied with the phase-field model. *Physical Review E*, 1997, 55(1): 765
- 5 Lo T S, Karma A, Plapp M. Phase-field modeling of microstructural pattern formation during directional solidification of peritectic alloys without morphological instability. *Physical Review E*, 2001, 63(3): 1504
- 6 Nestler B, Wheeler A A, Ratke L, et al. Phase-field model for solidification of a monotectic alloy with convection. *Physica D*, 2000, 141(2): 133
- 7 Warren J A, Kobayashi R, Lobkovsky A E, et al. Extending

- phase field models of solidification to polycrystalline materials. *Acta Materialia*, 2003, 51(20): 6035
- 8 Tong X, Beckermann C, Karma A. Velocity and shape selection of dendritic crystals in a forced flow. *Physical Review E*, 2000 61(1): R49
- 9 Jeong J H, Goldenfeld N, Dantzig J A. Phase field model for three-dimensional dendritic growth with fluid flow. *Physical Review E*, 2001, 64(4): 1602
- 10 Eggleston J J, McFadden G B, Voorhees P W. A phase-field model for highly anisotropic interfacial energy. *Physica D*, 2001, 150(2): 91
- 11 Yu Y M, Yang G C, Zhao D W, et al. Determination of interface width value in phase-field simulation of dendrite growth into undercooled melt. *Progress in Natural Science*, 2002, 12(3): 212
- 12 Kasajima H, Nagano E, Suzuki T, et al. Phase-field modeling for facet dendrite growth of silicon. *Science and Technology of Advanced Materials*, 2003, 4(6): 553
- 13 Aoyama T, Kuribayashi K. Influence of undercooling on solid/liquid interface morphology in semiconductors. *Acta Materialia*, 2000, 48(14): 3739
- 14 Karma A, Rappel W J. Phase-field simulation of three-dimensional dendrites: Is microscopic solvability theory correct? *Journal of Crystal Growth*, 1997, 174(1): 54

国家自然科学基金项目资助类型介绍：部分人才体系类基金

(1) 国家杰出青年科学基金

国家杰出青年科学基金是国家为促进青年科学和技术人才的成长，鼓励海外学者回国工作，加速培养造就一批进入世界科技前沿的优秀学术带头人而特别设立的。国家杰出青年科学基金资助国内及尚在境外即将回国工作的优秀青年学者，在国内进行自然科学基础研究。“十五”期间，国家杰出青年科学基金每年资助优秀青年学者 160 名左右，每人资助经费一般为 80—100 万元，研究期限为 4 年。

(2) 海外青年学者合作研究基金

为吸引和鼓励海外优秀青年学者每年在国内进行一定期限的基础研究，设立海外青年学者合作研究基金，该类基金项目平均资助强度为每项 40 万元，资助期限为 3 年。

(3) 香港、澳门青年学者合作研究基金

为吸引和鼓励香港、澳门优秀青年学者每年在内地进行一定期限的基础研究，设立香港、澳门青年学者合作研究基金，该类基金项目平均资助强度为每项 40 万元，资助期限为 3 年。

(4) 创新研究群体科学基金

为稳定地支持基础科学的前沿研究，培养和造就具有创新能力的人才和群体，自然科学基金委设立创新研究群体科学基金，资助国内以优秀科学家为学术带头人、中青年科学家为骨干的研究群体，围绕某一重要研究方向在国内进行基础研究。该类基金项目资助强度一般为每期 360 万元，资助期限为 3 年。

(5) 国家基础科学人才培养基金

为了实施科教兴国战略，加强基础科学人才的培养，提高我国基础科学人才的科学素质和实验能力，国家设立国家基础科学人才培养基金。该项基金由自然科学基金委负责实施与管理，主要用于支持国家理科基础科学人才培养基地(以下简称基地)的建设，包括：基地教学设备与教学软件、实验仪器与材料、实习设备以及图书资料的购置；基地教学改革研究和教师培训工作；基地高年级本科生的科学研究能力培训等等。本基金适度向西部倾斜，并部分资助特殊学科点的基础科学人才培养。