

温度梯度区域熔化作用下熔池迁移的元胞自动机模拟*

方辉¹⁾ 薛桦¹⁾ 汤倩玉¹⁾ 张庆宇¹⁾ 潘诗琰²⁾ 朱鸣芳^{1)†}

1) (江苏省先进金属材料高技术研究重点实验室, 东南大学材料科学与工程学院, 南京 211189)

2) (南京理工大学材料科学与工程学院, 南京 210094)

(2018年8月23日收到; 2018年12月5日收到修改稿)

本文采用耦合凝固和熔化效应的二维元胞自动机 (cellular automaton, CA) 模型, 对温度梯度区域熔化 (temperature gradient zone melting, TGZM) 效应引起的熔池在固液两相区中的迁移现象进行模拟研究. 模拟分析了抽拉速度、熔池初始位置、温度梯度和合金成分等因素对 TGZM 动力学的影响, 并将模拟结果与解析模型的预测结果进行比较验证. 通过模拟发现, 在温度梯度作用下, 熔池总是向着高温方向迁移; 当抽拉速度低于或高于临界抽拉速度时, 熔池朝向移动的液相线或固相线迁移; 对于给定的抽拉速度, 位于糊状区内临界位置以上的熔池会迁移进入液相, 而位于临界位置以下的熔池会逐步靠近固相线. 此外, 温度梯度越高, 合金成分越低, 熔池的迁移速度越快.

关键词: 定向凝固, 温度梯度区域熔化, 熔池迁移, 元胞自动机

PACS: 81.30.Fb, 78.20.Bh, 81.10.Fq

DOI: 10.7498/aps.68.20181587

1 引言

定向凝固是一种在学术研究和工业实践中常用的重要工艺方法. 定向凝固需要施加温度梯度, 在温度梯度的作用下, 由固/液界面处热力学平衡产生的浓度梯度引起溶质扩散, 使得糊状区内发生局部的凝固和重熔, 即靠近液滴/熔池或枝晶臂热端处的固相熔化, 而靠近熔池冷端处的液相凝固. 从而导致一些特殊的物理现象发生, 如液滴或枝晶间熔池或二次枝晶臂朝着高温方向迁移^[1-4]. 这些现象被称为“温度梯度区域熔化”(temperature gradient zone melting, TGZM)^[1].

Pfann^[2] 最早引入 TGZM 的概念, 用来描述温度梯度下糊状区的凝固/重熔现象. Tiller^[3] 从理论

上分析了在温度梯度影响下, 板状、圆柱状和球状的液相通过固相区域的迁移过程. Allen 和 Hunt^[4] 提出了一个描述一维静态糊状区中 TGZM 效应的解析模型 (AH 模型), 计算预测了稳态糊状区内液滴和二次枝晶臂的迁移速度. TGZM 效应对定向凝固的显微组织和微观偏析会产生重要影响^[1], 还可以应用于制备半导体材料^[5] 和热电材料^[6]、测试扩散系数^[7]、小尺度的材料合金化和净化^[2]、以及温度梯度瞬态液相扩散焊接^[8] 等方面.

由于 TGZM 效应的理论和实际应用价值较大, 近年来受到了学术界越来越多的关注, 学者们开展了大量的理论和实验研究^[9-15]. 法国的 Nguyen-Thi 等^[9] 进行了 X 射线同步辐射的原位实时观察实验, 对 Al-Ni 和 Al-Si 合金中液滴和二次枝晶臂的迁移速度进行了测量分析. 德国的 Buchmann

* 国家自然科学基金 (批准号: 51371051, 51501091)、中央高校基本科研业务费 (批准号: 2242016K40008) 和东南大学优秀博士论文培育基金 (批准号: YBJJ1627) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhunf@seu.edu.cn

和 Rettenmayr^[10] 以及 Bösenberg 等^[11] 研究了二元合金在温度梯度下糊状区内的显微组织演化, 发现糊状区内晶粒尺寸、晶粒长宽比和溶质浓度梯度的演变由重熔/再凝过程控制^[10]. TGZM 效应促使溶质从糊状区扩散至液相区^[11]. Pan 等^[15] 在 AH 模型的基础上, 建立了描述在静态和动态条件下糊状区中液滴迁移动力学的解析模型, 提出了液滴关于糊状区相对位置不变的临界抽拉速度准则和临界液滴位置准则.

随着计算机硬件和数值计算技术的迅速发展, 计算机数值模拟已成为与实验技术和理论研究并行发展的第三种科学研究方法. 元胞自动机 (cellular automaton, CA) 是一种尖锐界面模型, 能够有效地描述相变时显微组织形貌的复杂演化过程, 具有模型和算法简单、计算效率较高等优势. 因此, 在显微组织模拟领域得到了广泛应用. 国内外学者们建立了各种基于 CA 方法的数值模型, 对凝固过程中的显微组织演化进行模拟研究^[16–24]. 但之前的微观尺度 CA 模型一般都只考虑凝固机制, 而未包含熔化效应. 最近, 本课题组将之前仅考虑凝固机制的 CA 模型^[20] 进行拓展, 建立了包含凝固和熔化机制的二维微观尺度的 CA 模型^[24]. 应用该模型可对合金在固/液两相区等温时的枝晶粗化、TGZM 作用下的二次枝晶臂迁移、晶粒显微组织和成分偏析的演化过程进行模拟研究^[24–27]. 本文采用包含凝固和熔化机制的 CA 模型, 对 TGZM 作用下糊状区中的熔池迁移现象进行模拟, 研究抽拉速度、熔池的初始位置、温度梯度和合金成分对熔池迁移动力学的影响规律.

2 模型描述

2.1 CA 模型

在 CA 模型中采用局部溶质平衡法^[20] 计算固/液界面的迁移动力学, 即固/液界面迁移速度是界面实际成分与平衡成分之差的函数. 对于具有平界面的熔池迁移模拟, 可以不考虑固/液界面曲率的效应. 因此, 固/液界面平衡成分 C_1^{eq} 的计算公式为

$$C_1^{\text{eq}} = C_0 + \frac{T^* - T_1^{\text{eq}}}{m_1}, \quad (1)$$

式中 T^* 表示固/液界面的温度, T_1^{eq} 是初始溶质成分为 C_0 时的液相线温度, m_1 为液相线斜率.

基于界面的溶质平衡, 在一个时间步长 Δt 内, 固/液界面网格的固相分数增量 Δf_s 由下式计算:

$$\Delta f_s = g \cdot \frac{(C_1^{\text{eq}} - C_1^*)}{C_1^{\text{eq}}(1 - k)}, \quad (2)$$

式中 C_1^* 为界面的局部实际液相成分, 由浓度场计算确定; k 为溶质分配系数. g 为与邻位网格状态相关的几何参量, 由下式计算:

$$g = \min \left(\left(\sum_{m=1}^4 S_m^{\text{I}} + \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{m=1}^4 S_m^{\text{II}} \right) / 2, 1 \right), \quad (3a)$$

对于凝固界面:

$$S^{\text{I}}, S^{\text{II}} = \begin{cases} 0 & (f_s < 1) \\ 1 & (f_s = 1) \end{cases}, \quad (3b)$$

对于熔化界面:

$$S^{\text{I}}, S^{\text{II}} = \begin{cases} 0 & (f_s > 0) \\ 1 & (f_s = 0) \end{cases}, \quad (3c)$$

式中 S^{I} 和 S^{II} 分别为最近邻 4 个网格和次近邻 4 个网格的状态参数. 固相分数增量 $\Delta f_s > 0$ 时发生凝固, 反之, 发生熔化.

定义单个元胞中的平均浓度 $C = C_s f_s + C_l (1 - f_s)$, 其中 C_s 和 C_l 分别为该元胞的固相和液相成分. 根据 Fick 定律, 溶质扩散由下式计算:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot (D(f_s) \nabla (C/p(f_s))), \quad (4)$$

式中 $p(f_s)$ 为与固相分数相关的函数, 定义为 $p(f_s) = k f_s + (1 - f_s)$, $D(f_s)$ 是与元胞固相分数相关的扩散系数, 表达式为

$$D(f_s) = k D_s f_s + D_l (1 - f_s), \quad (5)$$

式中 D_s 和 D_l 分别为溶质在固相和液相中的扩散系数. (4) 式包含了溶质扩散和溶质再分配的作用. 采用显式格式的有限差分法和无扩散边界条件对 (4) 式进行数值计算, 根据溶质在液相中的扩散系数 D_l 和网格尺寸 Δx 确定稳态的时间步长 Δt :

$$\Delta t = \frac{\Delta x^2}{8D_l}. \quad (6)$$

2.2 解析模型

Pan 等^[15] 基于 AH 模型, 建立了一个描述 TGZM 效应导致的液滴/熔池在糊状区中迁移动力学的一维解析模型. 该解析模型假设液滴/熔池迁移过程中的固/液界面的溶质成分处于局部平衡, 凝固/熔化相变动力学由溶质在液相中的扩散所控制, 不考虑曲率效应以及溶质原子在固相中的扩散. 该解析模型已经进行了相场模拟结果以及 TGZM 效应作

用下二次枝晶臂迁移的实验结果的对比较证^[15].

本文采用二维的 CA 模型, 由于 TGZM 效应正比于温度梯度, 本文模拟中选取 x 方向为温度梯度方向, 而 y 方向温度梯度为 0. 在 TGZM 效应下熔池仅能沿 x 方向进行一维的直线运动. 因此, 二维和一维的模拟没有差别. 可以采用一维的解析模型对 CA 模拟结果进行比较验证. 下面对该解析模型的主要方程进行介绍.

有量纲的液滴/熔池迁移速度 V 和局部液相浓度 C_1^* 由以下公式计算:

$$V = \frac{dy_d(t)}{dt} = \frac{D_1 G}{(1-k)[T_m - T_0 - G(y_d(t) - V_p t)]}, \quad (7)$$

$$C_1^*(y_d) = \frac{T_m - T_0 - G(y_d(t) - V_p \cdot t)}{|m_1|}, \quad (8)$$

式中 G 为温度梯度, T_m 和 T_0 分别为纯 SCN 的熔

点和液滴/熔池在初始状态 $t = 0$ 时所处位置的温度, V_p 为抽拉速度. $y_d(t)$ 是液滴/熔池与固相线之间的距离, 它是时间 t 的函数.

为了求解该解析模型, 首先将 (7) 式无量纲化, 无量纲与有量纲之间通过以下关系进行转化: $\tilde{y} = y/l_0$, $\tilde{t} = t \cdot D_1/l_0^2$, $\tilde{v} = v \cdot l_0/D_1$ 和 $\varepsilon = V_p \cdot l_0/D_1$, 其中, $l_0 = \Delta T_0/G$ 为糊状区长度, $\Delta T_0 = T_1 - T_s$ 为初始成分 C_0 合金的液相线和固相线温度之差, T_1 为液相线温度, T_s 为固相线温度. 将无量纲液滴/熔池的位置 \tilde{y} , 液滴/熔池迁移速度 \tilde{v} , 抽拉速度 ε 和时间 \tilde{t} 代入 (7) 式, 无量纲液滴/熔池迁移速度可以表示为:

$$\frac{d\tilde{y}_d(\tilde{t})}{d\tilde{t}} = \frac{1}{1 - (1-k) \cdot (\tilde{y}_d(\tilde{t}) - \varepsilon \tilde{t})}. \quad (9)$$

根据无量纲变换求解得无量纲液滴/熔池位置 $\tilde{y}_d(\tilde{t})$ 为:

$$\tilde{y}_d(\tilde{t}) = \varepsilon \tilde{t} - \frac{\varepsilon - 1 - f^{-1}[(\varepsilon - 1 + \tilde{y}_0 \cdot (k - 1)\varepsilon) \exp(\varepsilon - 1 + \tilde{y}_0 \cdot (k - 1)\varepsilon - (k - 1)\varepsilon^2 \cdot \tilde{t})]}{(k - 1)\varepsilon}, \quad (10)$$

式中 \tilde{y}_0 是液滴/熔池的无量纲初始位置, $\tilde{y}_0 = 0$ 和 $\tilde{y}_0 = 1$ 分别表示固相线和液相线的无量纲位置. 将 (10) 式的 $\tilde{y}_d(\tilde{t})$ 代入 (9) 式, 可计算无量纲的液滴/熔池迁移速度 $d\tilde{y}_d/d\tilde{t}$. 然后, 将 $\tilde{y}_d(\tilde{t})$ 和 \tilde{t} 转换回有量纲变量, 代入 (8) 式, 可求得液滴/熔池的浓度 C_1^* .

该解析模型还提出了关于临界抽拉速度和临界液滴/熔池位置准则. 当抽拉速度低于或高于临界抽拉速度时, 液滴/熔池将分别向液相线和固相线迁移. 对于一个给定的抽拉速度, 处于临界位置的液滴/熔池关于液相线和固相线的相对位置保持不变, 位于临界位置上方和下方的液滴/熔池将分别向液相线和固相线迁移. 临界液滴/熔池速度 $V_{p,cr}$ 用下式计算:

$$V_{p,cr} = \varepsilon_{cr} \cdot D_1/l_T, \quad (11)$$

式中 $\varepsilon_{cr} = 1/[1 - (1-k)\tilde{y}_0]$, l_T 为糊状区长度. 临界液滴/熔池位置 $\tilde{y}_{0,cr}$ 用下式计算:

$$\tilde{y}_{0,cr} = (\varepsilon - 1)/(1 - k)\varepsilon. \quad (12)$$

表 1 为本文模拟所采用的 SCN-ACE 合金的物性参数^[15,28].

3 结果与讨论

3.1 抽拉速度的影响

根据 Pan 等^[15]提出的解析模型, 抽拉速度

V_p 会显著影响液滴/熔池的迁移行为. 本节分别采用低于和高于临界抽拉速度 $V_{p,cr}$ 的不同 V_p 值对熔池在糊状区的迁移动力学进行 CA 模拟.

首先, 对 $V_p < V_{p,cr}$ 的情况进行模拟. 模拟条件为 SCN-0.3 wt.%ACE 合金, 温度梯度 $G = 12$ °C/mm, 抽拉速度 $V_p = 0.6$ μm/s. 模拟区域采用 10×1500 的网格, 网格尺寸为 $\Delta x = 1$ μm. 固相线最初位于模拟区域底部以上 80 μm. 固相线以下的固相浓度和液相线以上的液相浓度设为均匀的 $C_0 = 0.3$ wt.% ACE; 在固相线和液相线之间的区域, 根据固相线温度对应的平衡浓度设置固相浓度梯度分布. 将一个厚度为 10 μm 的液相熔池置于靠近固相线的位置 ($\tilde{y}_0 = 0.05$), 初始熔池的浓度为局部温度所对应的平衡液相浓度. 图 1 为 $V_p = 0.6$ μm/s 条件下, CA 模拟和解析模型^[15]预测得到的熔池位置随时间的变化. 对于 SCN-

表 1 本文工作采用的物性参数^[15,28]

Table 1. The physical parameters used in the present work^[15,28].

符号	物理意义	数值
$D_1/m^2 \cdot s^{-1}$	溶质在液相中的扩散系数	1×10^{-9}
k	平衡分配系数	0.1
$m_1/K \cdot (\text{wt.}\%)^{-1}$	液相线斜率	-2.8
$T_m/^\circ\text{C}$	纯SCN的熔点	58.081

0.3 wt.% ACE 合金, 在 $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 和 $\tilde{y}_0 = 0.05$ 条件下, 由解析模型计算得到的临界抽拉速度 $V_{p, cr} = 1.59\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$. 由于抽拉速度 $V_p = 0.6\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$ 低于临界抽拉速度 $V_{p, cr}$, 熔池从初始的靠近固相线位置朝着移动的液相线方向迁移. 当时间为 280 s 时熔池到达液相线位置. 从图 1 中可以看出, CA 模拟结果与解析模型计算结果符合良好. 但接近液相线位置时两者略有差别. 分析原因主要有以下两点: 1) 在解析模型中, 熔池是无限薄的, 而在 CA 模拟中熔池具有一定厚度, 熔池的位置取自熔池的中心位置; 2) 在熔池迁移过程中, 解析模型假定固/液界面的成分即刻达到平衡, 而在 CA 模拟中, 熔池具有一定厚度, 溶质原子从冷端扩散至热端需要一定的时间, 因此, 固/液界面的成分不能即刻达到平衡.

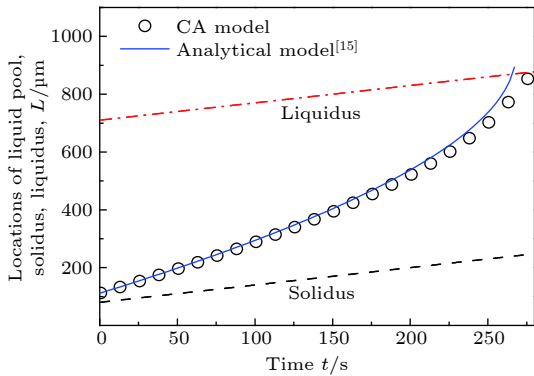


图 1 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在 $V_p=0.6\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$ ($\tilde{y}_0=0.05$) 和 $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 条件下, 迁移熔池位置随时间变化的 CA 模拟结果与解析模型^[15] 预测结果的比较
Fig. 1. Comparison of the CA simulation with the analytical prediction^[15] regarding the time evolution of the location of a migrating liquid pool for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $V_p=0.6\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$, $\tilde{y}_0=0.05$ and $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$.

图 2 为对应于图 1 条件下由 CA 模拟的熔池迁移速度 V 和浓度 C_1^* 随时间的变化. 速度 V 是针对熔池的中心位置进行计算的, 而 C_1^* 取熔池的浓度平均值. 如图 2 所示, 熔池速度随时间逐渐增加, 而熔池浓度随时间逐渐降低. 根据 (7) 式和 (8) 式, 熔池的迁移速度 V 与熔池和固相线之间的距离 $y_d(t)$ 成正比, 而熔池浓度 C_1^* 与 $y_d(t)$ 成反比. 如图 1 所示, 熔池位置随时间不断靠近液相线, 即 $y_d(t)$ 随时间而增大. 因此, 熔池的迁移速度 V 和浓度 C_1^* 分别随时间增大和降低 (图 2). 此外, 在熔池向液相线迁移过程中, 熔池厚度逐渐增宽. 可以从以下两个方面解释这个现象: 1) 在熔池迁移过程中, 熔

池热端界面发生熔化而冷端界面发生凝固, 当熔池向液相线迁移时, 熔化驱动力大于凝固驱动力, 使得熔化界面 (热端) 的迁移速度高于凝固界面 (冷端) 的迁移速度, 因而熔池的厚度逐渐增加; 2) 从图 2(b) 可以看出, 熔池向高温区迁移的过程中, 熔池内液相浓度降低, 为了保证区域的溶质守恒, 熔池厚度会相应增宽.

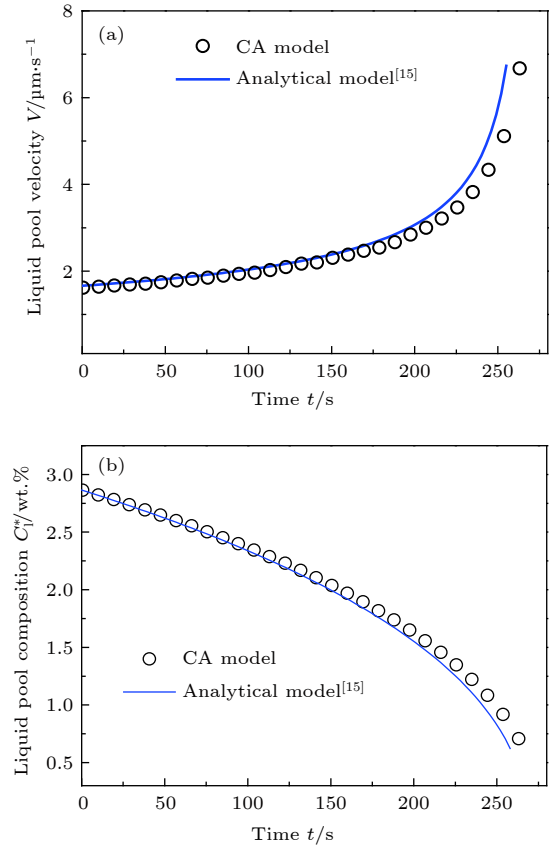


图 2 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在 $V_p=0.6\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$ ($\tilde{y}_0=0.05$) 和 $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 条件下, (a) 熔池迁移速度和 (b) 熔池成分随时间变化的 CA 模拟和解析模型^[15] 预测结果的比较
Fig. 2. Comparison of the CA simulation with the analytical prediction^[15] regarding the time evolution of (a) liquid pool velocity and (b) liquid pool composition for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $V_p=0.6\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$, $\tilde{y}_0=0.05$ and $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$.

对于 $V_p > V_{p, cr}$ 的情况, 取抽拉速度 $V_p = 5\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$. 计算区域为 50×2100 个网格, 其他模拟条件与图 1 相同. 将一个厚度为 $50\text{ }\mu\text{m}$ 的液相熔池置于糊状区中部略靠近液相线的位置 ($\tilde{y}_0 = 0.65$). 在该条件下临界抽拉速度 $V_{p, cr} = 3.82\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$. 如前所述, 熔池向液相线迁移时, 厚度略微增宽, 反之, 向固相线迁移时厚度减薄. 因此对于 $V_p > V_{p, cr}$ 的情况, 初始设置的液相熔池厚度相对较宽以保证

熔池到达固相线时,其厚度仍宽于最小厚度(约 $5\Delta x$).图3为CA模拟和解析模型在 $V_p = 5 \mu\text{m/s} > V_{p,cr}$ 的条件下预测得到的熔池位置随时间的变化.可以看出,随着时间的增加,熔池的位置向上移动,说明在温度梯度的作用下熔池总是向着高温方向迁移.然而,在 $V_p > V_{p,cr}$ 的条件下,熔池的迁移速度比所施加的抽拉速度低,即糊状区比熔池迁移得更快,导致熔池逐渐接近固相线位置.当时间为166 s时,熔池到达固相线位置.

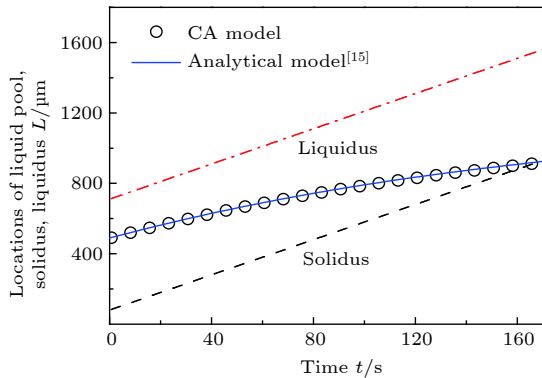


图3 SCN-0.3 wt.% ACE合金在 $V_p=5 \mu\text{m/s}$ ($\tilde{y}_0=0.65$)和 $G = 12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 条件下,迁移熔池位置随时间变化的CA模拟结果与解析模型^[15]预测结果的比较
Fig. 3. Comparison of the CA simulation with the analytical prediction^[15] regarding the time evolution of the location of a migrating liquid pool for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $V_p=5 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0=0.65$ and $G = 12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$.

图4为对应于图3条件下由CA模拟和解析模型得到的熔池迁移速度 V 和熔池浓度 C_1^* 随时间的变化.可以看出,在 $V_p > V_{p,cr}$ 的条件下,与图2中 $V_p < V_{p,cr}$ 的情况相反,熔池速度随时间逐渐降低,而熔池浓度随时间逐渐增加.

将熔池迁移到达移动的液相线或固相线所需的时间分别用 t_l 和 t_s 表示.为了研究抽拉速度 V_p 对 t_l 和 t_s 的影响,用不同的 V_p 值进行了CA模拟,结果如图5所示.图5(a)为 $V_p < V_{p,cr}$ ($=1.59 \mu\text{m/s}$)的条件下,取 $V_p = 0, 0.3, 0.6, 0.9$ 和 $1.2 \mu\text{m/s}$ 的抽拉速度时,SCN-0.3 wt.% ACE合金熔池迁移的CA模拟结果,其他的模拟条件与图1相同.从图中可以看出,CA模拟和解析模型得到的熔池从初始位置($\tilde{y}_0 = 0.05$)迁移到液相线位置所需的时间 t_l 均随 V_p 增加而增加.这是由于抽拉速度越高时,液相线移动越快,熔池需要更长的时间迁移到液相线的位置.

另一方面,为了模拟 $V_p > V_{p,cr}$ ($= 3.82 \mu\text{m/s}$)

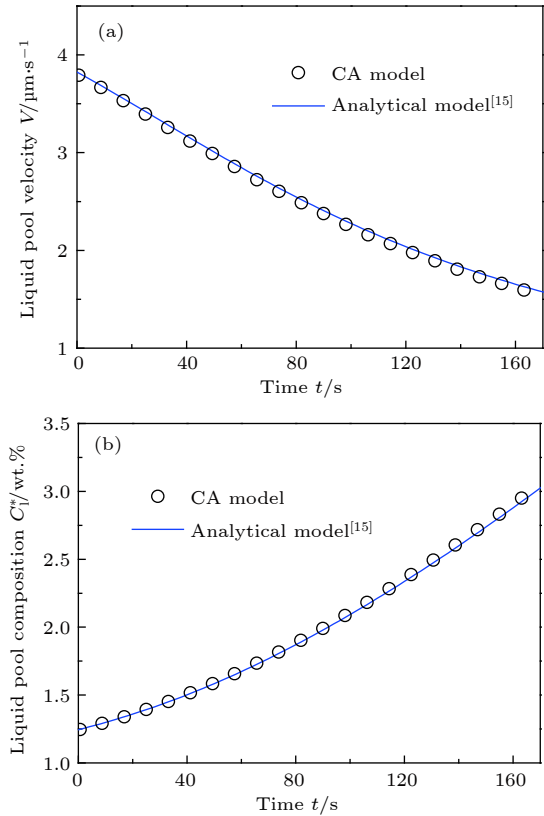


图4 SCN-0.3 wt.% ACE合金在 $V_p=5 \mu\text{m/s}$ ($\tilde{y}_0=0.65$)和 $G = 12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 条件下, (a)熔池迁移速度和(b)熔池成分随时间变化的CA模拟和解析模型^[15]预测结果的比较
Fig. 4. Comparison of the CA simulation with the analytical prediction^[15] regarding the time evolution of (a) liquid pool velocity and (b) liquid pool composition for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $V_p=5 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0=0.65$ and $G = 12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$.

的情况,取抽拉速度 $V_p = 4, 4.5, 5, 5.5$ 和 $6 \mu\text{m/s}$,其他的模拟条件与图3相同.图5(b)为上述条件下,CA模拟和解析模型计算得到的熔池从初始位置($\tilde{y}_0 = 0.65$)迁移到固相线所需的时间 t_s 随抽拉速度的变化.从图5(b)可以看出, t_s 随 V_p 增加而减小.随着 V_p 的增加,糊状区的抽拉速度与熔池的迁移速度差 $V_p - V$ 增加,使得熔池迁移到固相线所需的时间减少.

由图1—图5可以看出,CA模拟结果与解析模型的预测结果符合良好,验证了包含凝固/熔化效应的CA模型的定量模拟能力.

3.2 熔池初始位置的影响

为了考察分析熔池初始位置对熔池迁移动力学的影响,模拟比较了SCN-0.3 wt.% ACE合金在温度梯度 $G = 12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 和抽拉速度 $V_p =$

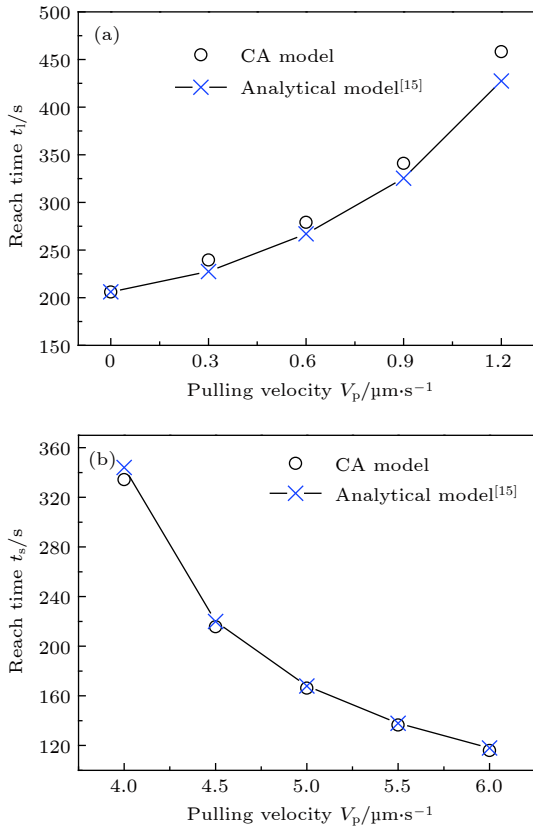


图 5 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在 $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 条件下, (a) $V_p < V_{p,cr}$ 时熔池从初始位置 ($\tilde{y}_0=0.05$) 迁移到移动的液相线所需时间 t_l 和 (b) $V_p > V_{p,cr}$ 情况下熔池从初始位置 ($\tilde{y}_0=0.65$) 迁移到移动的固相线所需时间 t_s 随抽拉速度变化的 CA 模拟与解析模型^[15] 预测结果比较

Fig. 5. Comparison of the CA simulations with the analytical predictions^[15] regarding the times required for a liquid pool to reach (a) the moving liquidus from $\tilde{y}_0=0.05$ at $V_p < V_{p,cr}$ and (b) the moving solidus from $\tilde{y}_0=0.65$ at $V_p > V_{p,cr}$ as a function of the pulling velocity for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$.

2.89 $\mu\text{m}/\text{s}$ 的条件下, 糊状区中 5 个不同初始位置熔池的迁移行为. 通过解析模型计算, 在上述条件下的相应无量纲临界位置为 $\tilde{y}_{0,cr} = 0.5$, 即位于糊状区的中部. 将 5 个初始厚度为 30 μm 的熔池分别置于 $\tilde{y}_0 = 0.08, 0.3, 0.5, 0.6$ 和 0.75 的无量纲初始位置. 图 6 为用浓度场显示的 5 个置于不同初始位置熔池的迁移演变过程. 可以看出, 糊状区固相基体和熔池浓度都沿着温度增高的方向降低. 很显然, 局部温度越低, 固相和液相的平衡浓度就越高. 在一个固定的坐标系内, 初始位置 \tilde{y}_0 不同的 5 个熔池都随时间向高温方向迁移. 标记为“3”的熔池初始位于临界位置 $\tilde{y}_{0,cr} = 0.5$ (糊状区的中部), 它相对于液相线和固相线的位置随时间基本保持不变. 标记为“4”和“5”的熔池初始位于 $\tilde{y}_0 = 0.6$ 和 0.75,

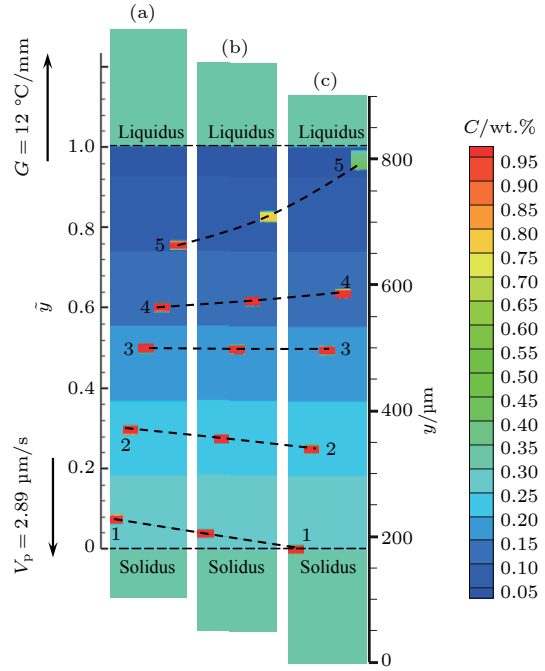


图 6 CA 模拟的 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在 $V_p = 2.89\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$ 和 $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 的条件下 (相应的临界位置 $\tilde{y}_{0,cr} = 0.5$), 5 个不同初始位置的熔池的迁移演化过程 (a) 2 s; (b) 20 s; (c) 37 s. 5 个熔池的无量纲初始位置分别为 $\tilde{y}_0 = 0.08, 0.3, 0.5, 0.6$ 和 0.75. \tilde{y} 为无量纲液滴位置, y 为液滴位置

Fig. 6. Simulated sequence of liquid pool migration for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$, $V_p = 2.89\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$ corresponding to $\tilde{y}_{0,cr} = 0.5$: (a) 2 s; (b) 20 s; (c) 37 s. The dimensionless initial positions of the five liquid pools are $\tilde{y}_0 = 0.08, 0.3, 0.5, 0.6$ and 0.75, respectively. \tilde{y} is the dimensionless droplet position, y is the droplet position.

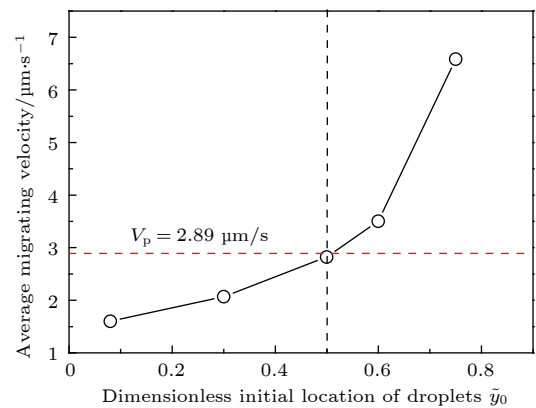


图 7 CA 模拟的 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在 $V_p = 2.89\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$ 和 $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 条件下 (相应的临界位置 $\tilde{y}_{0,cr} = 0.5$), 平均迁移速度随无量纲初始熔池位置的变化

Fig. 7. CA simulated average migrating velocity as a function of the dimensionless initial liquid pool position for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at $G = 12\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ and $V_p = 2.89\text{ }\mu\text{m}/\text{s}$, corresponding to $\tilde{y}_{0,cr} = 0.5$.

随时间逐渐接近液相线. 标记为“1”和“2”的熔池初

始位于 $\tilde{y}_0 = 0.08$ 和 0.3 , 随时间逐渐接近固相线. 从图 6 中也可以发现, 当熔池“5”迁移靠近液相线时, 其厚度增宽; 反之, 当熔池“1”接近固相线时, 其厚度略微变窄.

根据图 6 的 CA 模拟得到的 37 s 时 5 个熔池的迁移距离, 计算平均迁移速度. 图 7 为 CA 模拟的平均迁移速度随初始熔池位置的变化. 由图可见, 熔池迁移的平均速度随 \tilde{y}_0 的变化是非线性增加的. CA 模拟的初始位于 $\tilde{y}_0 = 0.5$ 的熔池的速度十分接近抽拉速度 $V_p = 2.89 \mu\text{m/s}$, 表明该熔池几乎与固/液相线是同步移动的. 初始位于 $\tilde{y}_0 = 0.6$ 和 0.75 的熔池的平均速度高于抽拉速度 V_p , 因此会逐渐接近液相线; 而初始位于 $\tilde{y}_0 = 0.08$ 和 0.3 的熔池由于初始位置低于临界位置, 平均速度低于 V_p , 因此会逐渐接近固相线.

3.3 温度梯度与合金成分的影响

本节模拟分析了温度梯度与合金成分对熔池迁移动力学的影响规律. 图 8 显示了不同的温度梯度下 SCN-0.3 wt.% ACE 合金的熔池迁移速度随时间演化的 CA 模拟结果. 图 8(a) 为 $V_p < V_{p, cr}$ 的情况. 模拟区域大小为 20×1200 个网格, $\Delta x = 1 \mu\text{m}$, 抽拉速度 $V_p = 0.6 \mu\text{m/s}$, 熔池初始位置 $\tilde{y}_0 = 0.3$, 施加的温度梯度范围为 $9\text{--}12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$, 用解析解计算得到对应条件下的临界抽拉速度 $V_{p, cr}$ 为 $1.19\text{--}1.59 \mu\text{m/s}$, 均高于 V_p , 因此, 熔池会迁移到达液相线. 如图 8(a) 所示, 在 4 个不同温度梯度下, 熔池的迁移速度均随时间增加而增大. 温度梯度越高, 熔池迁移驱动力越大, 熔池的迁移

速度越快. 此外, 在其他条件相同的情况下, 温度梯度越大, 糊状区的长度越短, 所以熔池到达液相线所用的时间越短. 由图 8(a) 中可知, 当温度梯度为 $G = 9$ 和 $G = 12 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 时, 熔池从 $\tilde{y}_0 = 0.3$ 的初始位置迁移至液相线位置所需时间分别约为 286 和 147 s.

图 8(b) 为 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在 $V_p > V_{p, cr}$ 时熔池的迁移速度随不同温度梯度变化的情况. CA 模拟的计算区域为 50×2800 个网格, $\Delta x = 1 \mu\text{m}$, 抽拉速度为 $V_p = 5 \mu\text{m/s}$, 熔池的初始位置 $\tilde{y}_0 = 0.7$, 温度梯度分别为 $5, 6, 7$ 和 $8 \text{ }^\circ\text{C/mm}$. 通过解析模型计算可得上述条件下对应的临界抽拉速度为 $0.66\text{--}1.06 \mu\text{m/s}$. 因此, 图 8(b) 满足 $V_p > V_{p, cr}$ 的条件. 根据图 8(b) 显示, 在不同的温度梯度下, 迁移速度均随时间的增加而降低. 此外, 温度梯度越高, 熔池向高温方向的迁移速度越快, 这一点与图 8(a) 中的趋势相似, 但图 8(b) 中熔池的迁移速度仍然小于糊状区的迁移速度, 因此熔池逐渐接近固相线; 而且由于温度梯度越高时糊状区长度越短, 故熔池从 $\tilde{y}_0 = 0.7$ 的初始位置迁移到固相线所用的时间也越短.

图 9 为 CA 模拟的不同成分 ($C_0 = 0.3\text{--}0.6 \text{ wt.}\%$) SCN-ACE 合金在温度梯度为 $G = 14 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 时的熔池迁移速度随时间的变化. 图 9(a) 取抽拉速度 $V_p = 0.2 \mu\text{m/s}$, 熔池的初始位置 $\tilde{y}_0 = 0.4$; 而图 9(b) 设置 $V_p = 6 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0 = 0.7$. 在上述条件下, 图 9(a) 和图 9(b) 分别是在 $V_p < V_{p, cr}$ 时熔池向液相线迁移和在 $V_p > V_{p, cr}$ 时熔池向固相线迁移的情况. 由图 9(a) 可以看出, 熔池向液相线迁移

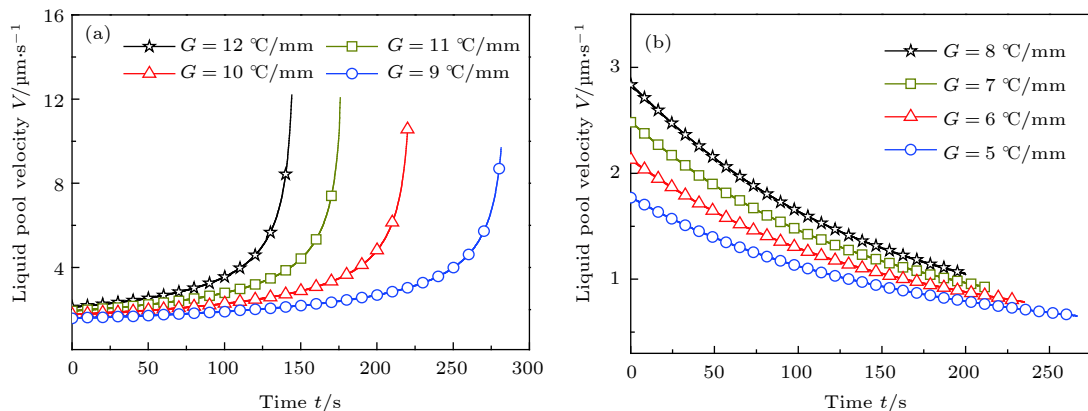


图 8 CA 模拟的 SCN-0.3 wt.% ACE 合金在不同温度梯度条件下, 熔池迁移速度随时间的变化 (a) $V_p = 0.6 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0 = 0.3$, $V_p < V_{p, cr}$; (b) $V_p = 5 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0 = 0.7$, $V_p > V_{p, cr}$

Fig. 8. CA simulated time evolution of liquid pool velocity for a SCN-0.3 wt.% ACE alloy at different temperature gradients and (a) $V_p = 0.6 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0 = 0.3$, $V_p < V_{p, cr}$; (b) $V_p = 5 \mu\text{m/s}$, $\tilde{y}_0 = 0.7$, $V_p > V_{p, cr}$.

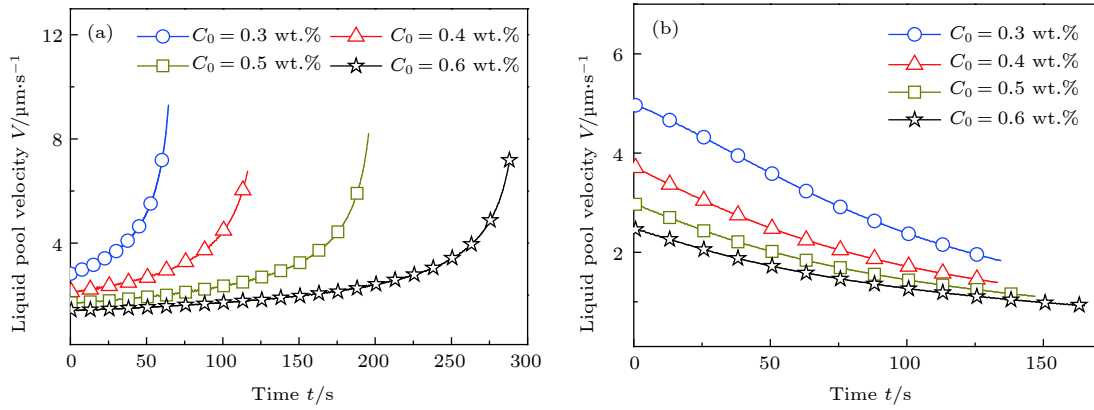


图 9 CA 模拟的不同成分 SCN-ACE 合金熔池在 $G = 14^\circ\text{C}/\text{mm}$ 时迁移速度随时间的变化 (a) $V_p = 0.2 \mu\text{m}/\text{s}$, $\tilde{y}_0 = 0.4$, $V_p < V_{p,cr}$; (b) $V_p = 6 \mu\text{m}/\text{s}$, $\tilde{y}_0 = 0.7$, $V_p > V_{p,cr}$

Fig. 9. CA simulated time evolution of liquid pool velocity for SCN-ACE alloys at $G = 14^\circ\text{C}/\text{mm}$, different compositions and (a) $V_p = 0.2 \mu\text{m}/\text{s}$, $\tilde{y}_0 = 0.4$, $V_p < V_{p,cr}$; (b) $V_p = 6 \mu\text{m}/\text{s}$, $\tilde{y}_0 = 0.7$, $V_p > V_{p,cr}$.

时, 浓度越高, 熔池迁移速度越慢; 且在相同的条件下, 浓度越高, 糊状区越宽, 因而熔池从初始位置 $\tilde{y}_0 = 0.3$ 迁移到液相线所需的时间越长. 从图 9(a) 还可以看出, 在 $V_p < V_{p,cr}$ 条件下, 不同成分熔池到达液相线的时间相差较大. 另一方面, 在 $V_p > V_{p,cr}$ 条件下, 熔池向固相线迁移, 不同成分的熔池到达固相线的时间相差较小 (图 9(b)). 这是因为成分低时熔池向高温端迁移的速度较快, 因此接近固相线的相对速度较低, 但同时成分越低糊状区越窄, 熔池迁移的距离变短, 使得不同成分的熔池从 $\tilde{y}_0 = 0.7$ 的初始位置到达固相线的时间相差较小.

4 结 论

本文采用包含凝固和熔化效应的 CA 模型模拟 SCN-ACE 透明合金定向凝固时由 TGZM 效应引起的熔池在糊状区中迁移的过程, 得到如下主要结论.

1) 在温度梯度作用下, 熔池总是向着高温方向迁移; 验证了 Pan 等提出的解析模型中的临界抽拉速度和临界位置的准则: 当抽拉速度低于或高于临界抽拉速度时, 熔池会分别朝向移动的液相线或固相线迁移; 对于给定的抽拉速度, 位于临界位置的熔池关于移动的糊状区的相对位置不变; 位于临界位置以上或以下的熔池会朝向移动的液相线或固相线迁移;

2) 当熔池靠近液相线时, 迁移速度加快, 浓度降低, 厚度增宽; 反之, 当熔池靠近固相线时, 迁移

速度降低, 浓度升高, 厚度减小;

3) 温度梯度越高, 合金成分越低, 熔池迁移的速度越快, 在 $V_p < V_{p,cr}$ 条件下, 熔池迁移到液相线所需的时间越短; 在 $V_p > V_{p,cr}$ 条件下, 熔池迁移到固相线的时间相差较小.

感谢德国 Otto Schott Institute of Materials Research, Friedrich Schiller University Jena 的 Markus Rettenmayr 教授的有益讨论.

参考文献

- [1] Rettenmayr M 2009 *Int. Mater. Rev.* **54** 1
- [2] Pfann W G 1955 *Trans. AIME* **203** 961
- [3] Tiller W A 1963 *J. Appl. Phys.* **34** 2757
- [4] Allen D J, Hunt J D 1976 *Metall. Mater. Trans. A* **7** 767
- [5] Kinoshita K, Arai Y, Inatomi Y, Tsukada T, Miyata H, Tanaka R 2016 *J. Cryst. Growth* **455** 49
- [6] Wang H, Li S, Li X, Zhong H 2017 *J. Cryst. Growth* **466** 56
- [7] Ma X, Yoshikawa T, Morita K 2014 *Sci. Adv. Mater.* **6** 1697
- [8] Shirzadi A A, Wallach E R 1999 *Acta Mater.* **47** 3551
- [9] Nguyen-Thi H, Reinhart G, Buffet A, Schenk T, Manginck-Noel N, Jung H, Bergeon N, Billia B, Hartwig J, Baruchel J 2008 *J. Cryst. Growth* **310** 2906
- [10] Buchmann M, Rettenmayr M 2005 *J. Cryst. Growth* **284** 544
- [11] Bösenberg U, Buchmann M, Rettenmayr M 2007 *J. Cryst. Growth* **304** 281
- [12] Löffler A, Reuther K, Engelhardt H, Liu D, Rettenmayr M 2015 *Acta Mater.* **91** 34
- [13] Liu D M, Li X Z, Su Y Q, Peng P, Luo L S, Guo J J, Fu H Z 2012 *Acta Mater.* **60** 2679
- [14] Liu D M, Li X Z, Su Y Q, Rettenmayr M, Guo J J, Fu H Z 2014 *Appl. Phys. A* **116** 1821
- [15] Pan S Y, Zhang Q Y, Zhu M F, Rettenmayr M 2015 *Acta Mater.* **86** 229
- [16] Zhu M F, Tang Q Y, Zhang Q Y, Pan S Y, Sun D K 2016 *Acta Metall. Sin.* **52** 1297 (in Chinese) [朱鸣芳, 汤倩玉, 张庆

- 宇, 潘诗琰, 孙东科 2016 *金属学报* **52** 1297]
- [17] Chen R, Xu Q Y, Liu B C 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 188102 (in Chinese) [陈瑞, 许庆彦, 柳百成 2014 *物理学报* **63** 188102]
- [18] Zhang Y P, Lin X, Wei L, Wang M, Peng D J, Huang W D 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 228106 (in Chinese) [张云鹏, 林鑫, 魏雷, 王猛, 彭东剑, 黄卫东 2012 *物理学报* **61** 228106]
- [19] Jiang H X, Zhao J Z 2011 *Acta Metall. Sin.* **47** 1099 (in Chinese) [江鸿翔, 赵九洲 2011 *金属学报* **47** 1099]
- [20] Zhu M F, Stefanescu D M 2007 *Acta Mater.* **55** 1741
- [21] Pan S, Zhu M 2010 *Acta Mater.* **58** 340
- [22] Li Q, Li D Z, Qian B N 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3477 (in Chinese) [李强, 李殿中, 钱百年 2004 *物理学报* **53** 3477]
- [23] Wei L, Lin X, Wang M, Huang W D 2015 *Chin. Phys. B* **24** 078108
- [24] Zhang Q Y, Fang H, Xue H, Pan S Y, Rettenmayr M, Zhu M F 2017 *Sci. Rep.* **7** 17809
- [25] Zhu M F, Xing L K, Fang H, Zhang Q Y, Tang Q Y, Pan S Y 2018 *Acta Metall. Sin.* **54** 789 (in Chinese) [朱鸣芳, 邢丽科, 方辉, 张庆宇, 汤倩玉, 潘诗琰 2018 *金属学报* **54** 789]
- [26] Zhang Q Y, Xue H, Tang Q Y, Pan S Y, Rettenmayr M, Zhu M F 2018 *Comput. Mater. Sci.* **146** 20
- [27] Zhang Q Y, Fang H, Xue H, Tang Q Y, Pan S Y, Rettenmayr M, Zhu M F 2018 *Scr. Mater.* **151** 28
- [28] Farup I, Drezet J M, Rappaz M 2001 *Acta Mater.* **49** 1261

Cellular automaton simulation of molten pool migration due to temperature gradient zone melting*

Fang Hui¹⁾ Xue Hua¹⁾ Tang Qian-Yu¹⁾ Zhang Qing-Yu¹⁾
Pan Shi-Yan²⁾ Zhu Ming-Fang^{1)†}

1) (*Jiangsu Key Laboratory of Advanced Metallic Materials, School of Materials Science and Engineering, Southeast University, Nanjing 211189, China*)

2) (*School of Materials Science and Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China*)

(Received 23 August 2018; revised manuscript received 5 December 2018)

Abstract

Directional solidification is a common and important process in both scientific research and industrial practice. Owing to the presence of temperature gradients during directional solidification, local remelting and solidification in the mushy zone occurs, resulting in some typical phenomena such as temperature gradient zone melting (TGZM). The TGZM influences the solidifying microstructure and microsegregation significantly. In the present work, a two-dimensional (2D) cellular automaton (CA) model involving the mechanism of both solidification and melting is adopted to investigate the migration phenomena of molten liquid pools in the mushy zone due to the TGZM. The effect of pulling velocity, initial liquid pool position, temperature gradient, and alloy composition on the TGZM kinetics are studied. The simulation results are compared with the analytical predictions, and good agreement between two models is obtained. It is found that under a temperature gradient, the liquid pool always migrates towards the high temperature direction. When the pulling velocity is lower than the critical velocity, the liquid pool migrates through the liquidus into the bulk liquid and the time required for a liquid pool to reach the liquidus increases with pulling velocity increasing. On the other hand, when a pulling velocity higher than the critical value is adopted, the liquid pool moves towards the solidus and the time required for migrating liquid pool to reach the solidus decreases with pulling velocity increasing. For a given pulling velocity, the liquid pools located above the critical position move towards the liquidus, while the others gradually approach to the solidus. When a molten liquid pool migrates towards the liquidus, the migration velocity and liquid pool thickness are found to gradually increase, while the liquid pool composition decreases with time. Inversely, for the molten liquid pool that moves towards the solidus, the migration velocity and liquid pool thickness gradually decrease, while the liquid pool composition increases with time going by. The average migration velocity of liquid pool caused by the TGZM effect increases with temperature gradient increasing and alloy composition decreasing. The CA simulations provide an insight into the complicated interactions among the local temperature, solute distribution and diffusion, and the kinetics of local remelting and solidification in the TGZM process.

Keywords: directional solidification, temperature gradient zone melting, liquid pool migration, cellular automaton

PACS: 81.30.Fb, 78.20.Bh, 81.10.Fq

DOI: 10.7498/aps.68.20181587

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51371051, 51501091), the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China (Grant No. 2242016K40008), and the Scientific Research Foundation of Graduate School of Southeast University, China (Grant No. YBJJ1627).

† Corresponding author. E-mail: zhumf@seu.edu.cn