Al-Ag-Ge合金熔凝过程中液相流动机制与旋涡组织形成的相关规律研究

李浩然, 阮莹*, 魏炳波

西北工业大学物理科学与技术学院, 西安 710072

* E-mail: ruany@nwpu.edu.cn

收稿日期: 2022-01-09; 接受日期: 2022-03-07; 网络版发表日期: 2022-05-20

国家自然科学基金(批准号: U1806219, 52073232, 52088101)、陕西省杰出青年科学基金(编号: 2020JC-11)和陕西省科技创新团队项目(编号: 2021TD-14)资助

摘要 采用电磁悬浮、感应熔炼、电弧熔炼和电阻熔炼等四种实验技术, 并结合有限元数值模拟方法, 系统地研究了 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的液相流动规律与凝固机制. 与常规慢速凝固情况不同, $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金在这四种实验条件下均能形成一种特殊的旋涡状凝固组织, 旋涡组织的形成受到凝固前熔体内的液相流动与冷却速率的影响. 在电磁悬浮与感应熔炼过程中洛伦兹力驱动熔体内的湍流流动, 电弧熔炼过程中的湍流流动主要由电弧力引起, 在电阻熔炼方式中则受表面张力与浮力驱动引起熔体内的层流流动. 在快速流动的作用下, Ag_2Al 相领先于近平衡条件下的(Al)相首先形核并以亚稳的旋涡状枝晶形态生长, 在生长过程中保留了合金熔体的流场运动形态. 当冷却速率增加时亚稳 Ag_2Al 枝晶快速生长, 凝固组织中的旋涡密度随之增加. 随流场驱动力增强, 亚稳 Ag_2Al 枝晶生长的曲率半径减小, 旋涡组织中各相之间的竞争形核与生长更加显著, 最终旋涡组织内部完全形成不规则(Al)+ Ag_2Al +(Ge)三相共晶.

关键词 液相流动, 冷却速率, 共晶, 快速凝固, 凝固组织

1 引言

非平衡条件下共晶凝固机制是金属材料科学领域的一项重要研究课题. 在近平衡条件下, 若两相的体积分数相近, 在凝固过程中通常形成规则的层片共晶^[1]. 非平衡条件下, 在共晶形核与长大过程中, 各相的形核速率、生长速度受到溶质场、流场、温度场等物理场的影响, 引起共晶组织发生改变, 从而对合金的应用性能产生显著影响^[2-5]. 因此, 揭示凝固条件与共晶组

织形成之间的物理规律, 探索共晶组织形成机制, 具有重要的科学意义与应用价值.

Jackson和Hunt^[6]对二元共晶生长模式进行了系统性的总结. 在此基础上, Trivedi等人^[7]将JH模型进行扩展, 提出了快速凝固条件下共晶生长的TMK模型. 随后, Kurz和Trivedi^[8]在TMK模型的基础上考虑了快速共晶生长过程中凝固前沿的非平衡溶质扩散以及界面能等因素, 进一步完善了该模型. 尽管上述模型已广泛应用于非平衡条件下共晶生长的研究中, 但以上模型

引用格式: 李浩然, 阮莹, 魏炳波. Al-Ag-Ge合金熔凝过程中液相流动机制与旋涡组织形成的相关规律研究. 中国科学: 技术科学, 2022, 52: 941-956
Li H R, Ruan Y, Wei B B. Fluid flow and vortex-shaped structure formation mechanisms of Al-Ag-Ge alloy (in Chinese). Sci Sin Tech, 2022, 52: 941-956, doi: 10.1360/SST-2022-0009

主要针对凝固前沿的扩散与传质过程进行分析. 在非平衡条件下, 共晶生长不仅受到溶质场的影响, 界面前沿的液相流动对于共晶的形核长大过程也具有重要影响. 遗憾的是, 目前仍然缺乏相关研究.

在共晶的凝固过程中, 固液界面前沿的液相流动会导致界面形态的不稳定性增加, 从而对凝固过程中的相选择与共晶生长形态产生影响^[9~11]. 在地面条件下, 浮力驱动的自然对流导致熔体内的液相流动, 并通过改变凝固界面前沿的溶质场以及界面形态, 影响共晶生长速度以及共晶形态^[12,13]. 此外, 由于表面张力梯度引起的Marangoni对流, 对合金熔体的传热和质量运输, 以及晶体生长等过程均有显著影响^[14~17], 但在地面条件下, 该现象往往会被重力所掩盖. 为了消除重力引起的对流效应, 研究者通过空间实验以及空间环境的地面模拟方法探索微重力条件下的Marangoni对流以及晶体生长与合金凝固机理^[18~21]. 此外, 利用电磁场能够在合金熔体内形成强湍流并对热量运输与传质过程产生影响, 进而影响后续的凝固组织形成^[22].

Al-Ag-Ge合金属于低熔点三元共晶合金体系, 在凝固过程中涉及(Al)与(Ge)固溶体相以及 Ag_2Al 金属间化合物相之间的竞争与协同生长. 研究者基于自由落体方法, 分析了 $\text{Al}_{57}\text{Ag}_{21}\text{Ge}_{33}$ 合金在微重力条件下的快速凝固机理^[23]. 在深过冷快速凝固条件下, 由于各相竞争形核与生长更加凸显, 凝固组织完全由不规则三相共晶构成. 而在Marangoni效应作用下, 合金液滴中的(Ge)相向液滴边缘运动, 并在液滴表面形成(Ge)圆环. 本文以位于(Al)相区的 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金为研究对象, 采用落管无容器处理技术研究了该合金在微重

力条件下的快速凝固机制^[24], 发现亚稳 Ag_2Al 枝晶在生长过程中受到Marangoni对流的影响, 形成特殊的旋涡状枝晶结构. 相比之下, 在近平衡凝固条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金熔体内的温度梯度很小, 熔体内的自然对流受到抑制, 凝固组织由初生(Al)枝晶、 Ag_2Al 枝晶与(Al)+(Ge)共晶构成, 未形成旋涡状凝固组织^[24]. 为了进一步揭示在非平衡凝固条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金内液相流动规律和特殊旋涡状凝固组织形成特征, 本文采用电磁悬浮、感应熔炼、电弧熔炼和电阻熔炼四种实验技术并结合有限元数值模拟方法, 对该合金的凝固机制进行了研究, 分析讨论了加热方式、流场驱动力、冷却速率对旋涡组织形成的影响机制. 在前三类实验中研究洛伦兹力与电弧力引起的湍流流动与凝固组织形成规律, 在电阻熔炼实验中研究浮力与表面张力驱动的自然对流及相应的凝固机理.

2 实验与计算方法

2.1 实验方法

采用电磁悬浮、感应熔炼、电弧熔炼、电阻熔炼四种实验技术研究了 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的液相流动与旋涡组织形成规律.

图1(a)是电磁悬浮实验示意图, 在电磁悬浮实验过程中, 将质量约0.6 g的样品放置在石英支架上, 并置于悬浮线圈的中上部, 抽真空至 1.0×10^{-5} Pa, 利用高频感应装置将样品悬浮并加热熔化至过热200 K后, 用He气将其冷却, 样品温度由Raytec Marathon型红外温度仪测定, 精度为 ± 5 K.

图1 (网络版彩图)实验方法示意图. (a) 电磁悬浮; (b) 感应熔炼; (c) 电弧熔炼; (d) 电阻熔炼

Figure 1 (Color online) Schematics of experimental methods. (a) Electromagnetic levitation; (b) induction melting; (c) arc melting; (d) resistance melting.

在感应熔炼实验中, 样品放置在尺寸为 $\Phi 10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ 的氧化铝坩埚中, 随后将装好样品的坩埚装入尺寸为 $\Phi 15\text{ mm} \times 160\text{ mm}$ 的石英试管中, 并将试管固定于腔体内加热线圈中央, 如图1(b)所示. 抽真空至 $1.0 \times 10^{-5}\text{ Pa}$ 后反充入体积为1:1的高纯He气和Ar气至1 atm, 然后利用高频感应装置将样品加热熔化至过热200 K, 待合金熔化均匀后, 关闭高频感应装置, 合金熔体在腔体中自然冷却.

电弧熔炼实验在超高真空电弧熔炼炉中进行, 如图1(c)所示. 通过钨针尖的弧光放电将高纯Al(99.999 wt.%), Ag(99.999 wt.%), Ge(99.999 wt.%)原料熔化, 合金熔体通过底部的水冷铜模快速冷却并凝固, 获得质量约0.6 g的合金.

电阻熔炼示意图如图1(d)所示, 在实验过程中, 将样品放置在尺寸为 $\Phi 10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ 的氧化铝坩埚内, 随后将装好样品的坩埚装入尺寸为 $\Phi 15\text{ mm} \times 160\text{ mm}$ 的石英试管中, 并对玻璃试管进行真空封装. 将封装好的试管装入箱式电阻炉中, 并以 10 K min^{-1} 的速率升温至 700°C , 箱式炉在220 V(50 Hz)的工频电压条件下运行, 以 10 K min^{-1} 的速率升温至 700°C 并将合金熔化, 保温5 min后取出试管, 合金熔体分别在水、空气两种介质中冷却并凝固. 实验结束后, 将合金样品沿纵轴切开, 镶嵌后抛光. 使用FEI Helios G4 CX型扫描电子显微镜(SEM)对合金的凝固组织进行表征.

2.2 计算方法

采用COMSOL有限元计算软件对合金熔体在电磁悬浮、感应熔炼、电弧熔炼、电阻熔炼四种实验条件下的凝固过程进行模拟, 均采用二维轴对称模型进行模拟, 计算过程中使用的物理量及其数值如表1所列, 其中, 合金的物性参数按照构成元素的原子百分比线性拟合得到^[25].

在电磁悬浮模型中, 假设合金熔体在悬浮过程中无旋转与形变, 利用Maxwell方程组计算合金熔体内部的电磁场与洛伦兹力分布:

$$\begin{cases} \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \\ \mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}, \end{cases} \quad (1)$$

表1 数值模拟中采用的物理量

Table 1 Physical parameters used in numerical simulation

物理量	单位	数值
合金密度 (ρ)	kg m^{-3}	4081
合金液相线温度 (T_L)	K	831
合金熔化潜热 (L)	J Kg	2.5×10^5
合金电导率 (σ)	S m^{-1}	3.9×10^6
合金比热 (C_p)	$\text{J Kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	853
合金热导率 (k)	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	300
合金熔体表面辐射系数 (ε)	—	0.21
合金熔体动力学黏度 (η)	Pa s	2.3×10^{-3}
合金热膨胀系数 (α)	K^{-1}	8.9×10^{-5}
表面张力温度系数 ($\partial\gamma/\partial T$)	$\text{N m}^{-1} \text{K}^{-1}$	3×10^{-4}
感应电流 (I)	A	200
电流频率 (f)	Hz	5×10^5
阳极功函数 (ϕ_a)	V	4.65
阴极功函数 (ϕ_c)	V	4.52
氩气电离势 (V_i)	V	15.68
环境温度 (T_{exp})	K	300
导热系数(空气) (k_a)	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	2.6×10^{-2}
导热系数(水) (k_w)	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	0.61
MoSi ₂ 电导率 (σ_M)	S m^{-1}	6.7×10^5
玻尔兹曼常数 (k_B)	J K^{-1}	1.38×10^{-23}

式中, $\mathbf{H}$ 为磁场强度, 电流密度, ε_0 为真空介电常数, $\mathbf{E}$ 为电场强度, t 为时间, $\mathbf{B}$ 为磁感应强度, σ 为合金电导率.

将合金熔体假定为不可压缩流体, 连续性方程满足:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (2)$$

式中, $\mathbf{u}$ 为液相流动速度.

采用k- ε 湍流模型计算熔体内的湍流流动, Navier-Stokes方程满足:

$$\rho \left[\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right] = \nabla \cdot [-p \mathbf{I} + \eta (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)] + \mathbf{f}_L + \mathbf{f}_v + \mathbf{f}_g, \quad (3)$$

式中, ρ 为合金密度, $\mathbf{f}_L = 0.5 Re(\mathbf{J} \times \mathbf{B})$, 表示合金熔体受到的洛伦兹力. $\mathbf{f}_v$ 表示固液两相区流动的阻力, 根据Carman-Kozeny模型^[26], $\mathbf{f}_v$ 表示为

$$\mathbf{f}_v = \frac{A_{\text{mush}}(1-f_l)^2}{f_l^{3+\xi}} \mathbf{u}, \quad (4)$$

式中, $A_{\text{mush}}=10^6$, 为糊状区系数, f_l 代表液相体积分数, ξ 为一个很小的数(10^{-6}), 防止 $f_l=0$ 时分母为0.

式(3)中, $\mathbf{f}_g$ 为浮力项, 根据Boussinesq近似, $\mathbf{f}_g$ 表示为

$$\mathbf{f}_g = -\rho[1-\beta(T-T_L)]\mathbf{g}, \quad (5)$$

式中, T_L 为合金液相线温度, β 为合金熔体的热膨胀系数, $\mathbf{g}$ 为重力加速度.

合金熔体内的热传导由如下方程描述:

$$\rho C_p^* \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot \rho C_p^* T \mathbf{u} = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q_m, \quad (6)$$

式中, C_p^* 为修正的合金比热, T 为温度, k 为合金热导率, Q_m 表示合金熔体处于电磁场内产生的电磁热, 表示为

$$Q_m = \frac{1}{2} \text{Re}(\mathbf{J} \times \mathbf{E}). \quad (7)$$

式(6)中, 修正的合金比热 C_p^* 包含了合金熔体在凝固过程中释放的结晶潜热, 通过如下公式计算:

$$C_p^* = C_p + L \frac{da_m}{dT}, \quad (8)$$

式中, C_p 为合金比热, a_m 表示液相质量分数.

样品的冷却与凝固通过流向悬浮熔体表面的He气实现, 样品表面的传热过程通过如下方程计算:

$$\mathbf{q} \cdot \mathbf{n} = h_0(T - T_{\text{exp}}), \quad (9)$$

式中, $\mathbf{q} \cdot \mathbf{n}$ 表示沿熔体表面法线方向的热通量, T 为熔体温度, 根据Ranz与Marshall等人^[27]提出的传热模型, 对流换热系数 h_0 满足:

$$h_0 = \frac{k_0}{D}(2 + 0.6Re^{1/2}Pr^{1/3}), \quad (10)$$

式中, k_0 为He气的热传导系数, Re 为雷诺数, Pr 为普朗特数.

在感应熔炼的模拟过程中依次计算施加高频电磁场时合金熔体内的流场、温度场以及凝固阶段关闭电磁场时的物理场分布. 整个计算域由合金熔体、氧化铝坩埚、石英试管、感应线圈、线圈内冷却水、腔体内Ar气等六部分构成, 其中, 模型中的合金熔体域直径 h , 高度 d 分别为7.8和3.6 mm.

熔体内的电磁力与洛伦兹力分布可由式(1)计算得到, 采用式(1)和(3)表示的k- ϵ 湍流模型计算熔体内

的液相流动, 计算时考虑熔体内由洛伦兹力驱动的强制对流、表面张力引起的Marangoni对流以及浮力引起的自然对流. 在腔体壁添加恒温边界条件($T=300$ K), 熔炼结束后熔体在腔体内自然冷却.

电弧熔炼的计算域由钨阴极、电弧等离子体及充当阳极的合金熔体三部分构成, 如图2所示. 计算域内的电场、温度场、流场可由式(1)~(8)描述. 表2给出了各个计算域的边界条件. 在钨针上表面(AB)施加 $I_0=100$ A的熔炼电流. 在钨阴极与电弧等离子体界面(BI , IH)处, 通过如下方程计算界面处的能量传递^[28]:

$$\mathbf{q}_a \cdot \mathbf{n} - \mathbf{q}_p \cdot \mathbf{n} = j_i V_i - j_e \phi_c - \epsilon k_B T^4, \quad (11)$$

图2 (网络版彩图)电弧熔炼模型计算域

Figure 2 (Color online) Computational domain of arc melting system.

表2 电弧熔炼模型的边界条件

Table 2 Boundary conditions used for arc melting model

Boundary	T	$\mathbf{u}, p$	$V, \mathbf{A}$
AB	$T=T_{\text{exp}}$	—	$I_0=100$ A
BC, CD	$T=T_{\text{exp}}$	—	$\mathbf{j} \cdot \mathbf{n}=0$
DE	eq. (16)	$\mathbf{u}=0$	$V=0, \mathbf{A} \times \mathbf{n}=0$
EF	eq. (16)	$\mathbf{u}=0$	$V=0, \mathbf{A} \times \mathbf{n}=0$
DG	eq. (15)	eq. (18)	$\mathbf{j} \cdot \mathbf{n}=0$
HI	eq. (11)	—	$\mathbf{j} \cdot \mathbf{n}=0$
BI	eq. (11)	—	$\mathbf{j} \cdot \mathbf{n}=0$

式中, $\mathbf{q}_a \cdot \mathbf{n}$ 与 $\mathbf{q}_p \cdot \mathbf{n}$ 分别表示沿等离子体与阴极表面法线方向的热通量, j_e 与 j_i 分别表示电子流密度与离子流密度, V_i 为氩气电离势, ϕ_c 为钨阴极功函数, ε 为表面辐射率, k_B 为玻尔兹曼常数.

对于式(11)表示的阴极热离子发射过程, 根据Lowke等人^[29,30]提出的模型, 电子流密度 j_e 不超过Richardson电流密度 j_r , j_r 可由下式表示:

$$j_r = A_R T^2 \exp\left(-\frac{e\phi_{\text{eff}}}{k_B T}\right), \quad (12)$$

式中, A_R 为Richardson常数, e 为电子电荷, ϕ_{eff} 为阴极表面热离子发射的有效功函数. 通过下式计算得出 j_e 与 j_i 的值:

$$j_e = \begin{cases} j_r, & \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} - j_r > 0, \\ \mathbf{j} \cdot \mathbf{n}, & \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} - j_r \leq 0, \end{cases} \quad (13)$$

$$j_i = \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} - j_e. \quad (14)$$

电弧等离子体与阳极界面(DG)处的能量传递通过下式计算^[28]:

$$\mathbf{q}_a \cdot \mathbf{n} - \mathbf{q}_p \cdot \mathbf{n} = (\mathbf{j} \cdot \mathbf{n})\phi_a - \varepsilon k_B T^4, \quad (15)$$

式中, $\mathbf{j}$ 为阳极表面的电流密度, ϕ_a 为阳极功函数.

合金熔体的冷却通过铜模表面冷却水的对流换热实现, 在阳极侧壁(DE)与底部边界(EF)添加对流换热边界条件^[31], 表示为

$$\mathbf{q} \cdot \mathbf{n} = h_0(T - T_{\text{exp}}). \quad (16)$$

对流换热系数 h_0 满足:

$$h_0 = \begin{cases} \frac{2k}{L} \frac{0.3387 Pr^{1/3} Re^{1/2}}{\left(1 + \left(\frac{0.0468}{Pr}\right)^{2/3}\right)^{1/4}}, & Ra \leq 5 \times 10^5, \\ \frac{2k}{L} Pr^{1/3} (0.037 Re^{4/5} - 871), & Ra > 5 \times 10^5, \end{cases} \quad (17)$$

式中, L 为特征长度, Ra 为瑞利数.

在计算熔体内的流场时考虑浮力引起的自然对流, 通过式(5)所示的Boussinesq近似计算. 熔炼过程中电弧对熔体表面(DG)施加压力并引起熔体内的液相流动, 压力 P_{arc} 可由下式计算得到^[32]:

$$P_{\text{arc}}(r) = \frac{3\mu_0 I^2}{4\pi^2 r_j^2} \exp\left(-\frac{3r^2}{r_j^2}\right), \quad (18)$$

式中, μ_0 为磁导率, r_j 为分布参数.

熔体内的Marangoni对流由熔体表面(DG)的剪切力 τ 引起, 可由下式计算得到:

$$\tau = \frac{\partial \gamma}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial r}, \quad (19)$$

式中, $\partial \gamma / \partial T$ 代表表面张力随温度的变化系数.

电阻熔炼模型的计算域由合金熔体、氧化铝坩埚、石英试管三部分构成, 合金熔体域大小与感应熔炼模型相同. 在模拟的初始时刻, 合金熔体为700°C的均匀过热熔体, 冷却过程开始后, 在试管壁施加自然对流换热边界条件, 实现合金熔体的冷却. 分别模拟合金熔体在水与空气两种冷却介质中的凝固过程, 冷却介质的温度均设置为300 K.

在电阻熔炼过程中, 合金熔体内部的液相对流为浮力驱动的自然对流, 对流速率较低, 采用层流模型进行计算, Navier-Stokes方程满足:

$$\rho \left[\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right] = \nabla \cdot [-p \mathbf{I} + \eta (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)] + \mathbf{f}_v + \mathbf{f}_g. \quad (20)$$

对试管外壁施加自然对流换热边界条件, 试管与环境之间的传热速率为

$$q = h_0(T_{\text{exp}} - T), \quad (21)$$

式中, 换热系数 h_0 在水平壁与垂直壁处分别表示为^[31]

$$h_0 = \begin{cases} \frac{k}{L} 0.54 Ra^{1/4}, & 10^4 \leq Ra \leq 10^7, \\ \frac{k}{L} 0.15 Ra^{1/3}, & 10^7 \leq Ra \leq 10^{11}, \end{cases} \quad (22)$$

$$h_0 = \frac{k}{L} \left[0.68 + \frac{0.67 Ra^{1/4}}{\left(1 + \left(\frac{0.492k}{\mu C_p}\right)^{9/16}\right)^{4/9}} \right], \quad (23)$$

式中, L 表示特征长度, Ra 为瑞利数. 在上式中取热导率 k 为 k_a 与 k_w , 分别表示空气与水两种冷却介质的热导率, 用于计算不同冷却条件下的温度场.

3 结果分析与讨论

3.1 合金熔体的液相流动

在本文采用的实验方法中, 熔体内的流动包括洛伦兹力或电弧力驱动的强制对流、浮力驱动的自然对

流以及表面张力引起的Marangoni对流. 驱动力的强弱直接决定熔体内的流动速率, 进而影响熔体的流动状态与后续的凝固组织形成.

合金熔体内的流场驱动力取决于实验时的加热方法. 本文采用的加热方法分为三类, 在电磁悬浮与感应熔炼过程中, 电磁场使合金内形成涡流, 通过涡流的热效应实现合金的熔化. 第二类方法为电阻炉熔炼方法, 熔炼过程中通过直流电源产生电弧加热被熔炼的金属. 在以上两类加热方法中需要考虑电磁场或电弧对熔体内流动的影响. 而在电阻熔炼过程中箱式炉体内的硅钼棒作为电阻炉的发热体, 通电后电能转化为内能, 通过炉膛内的对流和辐射对样品进行加热. 由于箱式炉的工作电压为220 V(50 Hz)交流电, 因此需要讨论硅钼棒通电后产生的电磁场对熔体内温度场与流场的影响.

对硅钼棒周围的电磁场以及熔体内的流场进行模拟, 将硅钼棒假定为线圈形态, 并构建二维轴对称模型进行简化计算, 如图3(a)所示. 在实验过程中, 硅钼棒外存在厚度约50 mm的耐火层, 炉体内壁与封装试管之间也存在一定的距离, 将硅钼棒同封装试管外壁之间的径向间距设为工作距离 L_0 . 研究 L_0 对熔体内电磁场与流场的影响. 图3(b)为熔体内感应电流密度 j 与洛伦兹力 f_L 随工作距离 L_0 的变化规律, j 与 f_L 均随 L_0 的增大而以指数形式迅速降低. 在本文的实验条件下, 由于 L_0 在50 mm以上, 硅钼棒产生的电磁场已明显衰减, 合金熔体内几乎不存在感应加热现象, 洛伦兹力也可忽略不计. 因此在实验过程中, 可不考虑在交变电压的工作条件下电磁场对熔体内温度场与流场的影响. 电阻熔炼过程中熔体内的流场主要受表面张力与浮力驱动, 与前三种实验方法相比, 流场驱动力较弱.

首先讨论前三种驱动力较强的液相流动. 图4为不同阶段下电磁悬浮熔体内部的温度场与流场. 由于趋肤效应, 感应电流主要集中于熔体表面, 同时熔体通过流过熔体表面的氦气进行冷却, 熔体内温度自熔体下表面附近区域到熔体上部逐渐降低. 由于电磁悬浮过程中悬浮与加热同时进行, 在整个悬浮熔凝过程中, 电磁场始终作用于合金熔体并驱动熔体内的液相流动, 液相流动速率的最大值在 0.3 m s^{-1} 以上, 流场在冷却过程中并未衰减并继续维持至凝固起始阶段. 根据雷诺数可以判断不同实验条件下合金熔体所处的流动状态. 雷诺数 Re 满足:

图3 (网络版彩图)交流电阻熔炼过程中的磁场计算. (a) 物理模型示意图; (b) 感应电流密度 j 与洛伦兹力 f_L 随工作距离 L_0 的变化规律

Figure 3 (Color online) Calculation of magnetic field during alternating current (AC) resistance melting. (a) Schematic of physical model; (b) variation of induced current density j and Lorentz force f_L with working distance L_0 .

$$Re = \frac{\rho u L}{\eta}. \quad (24)$$

取特征长度 L 为6.5 mm, 计算得到 Re 约为 4×10^3 , 熔体内的液相流动为典型的湍流流动^[33].

图5为感应熔炼冷却过程中熔体内部流场随时间的变化, t 代表冷却时长. 在冷却过程未开始时($t=0$), 熔体内的流场形态为电磁力驱动的双旋涡流场, 液相相对流速率较高, 最大流动速率为 0.45 m s^{-1} , 如图5(a)所示. 取特征长度 $L=3.6 \times 10^{-3} \text{ m}$, 计算得到 Re 约为 2.9×10^3 , 与电磁悬浮条件下类似, 熔体处于湍流状态. 电磁场关闭后湍流迅速衰减, 熔体内部流场形态由冷却前的双旋涡流场向单旋涡流场形态转变, 液相流动

图 4 (网络版彩图)不同阶段下电磁悬浮熔体内部温度场与流场。(a) 过热阶段; (b) 冷却阶段; (c) 凝固起始阶段

Figure 4 (Color online) Temperature and flow field in electromagnetic levitation droplet at different stages. (a) Superheating; (b) cooling; (c) initial of solidification.

图 5 (网络版彩图)感应熔炼后熔体内部流场随冷却时间 t 的变化。(a) $t=0$ s; (b) $t=1$ s; (c) $t=2$ s; (d) 表面张力 F_γ 与浮力 F_B 随 t 的变化; (e) 液相流动速率 u 与温度 T 随 t 的变化

Figure 5 (Color online) Evolution of flow field in alloy melt after induction heating. (a) $t=0$ s; (b) $t=1$ s; (c) $t=2$ s; (d) surface tension force F_γ and buoyant force F_B vs. t ; (e) u and T versus t .

速率显著降低, 如图5(b)和(c)所示。此时熔体内的流动主要由表面张力与浮力驱动。在整个合金熔体内对

式(5)给出的浮力值 f_g 进行体积分, 并在熔体表面对式(19)给出的剪切力 τ 值进行面积分, 比较浮力 F_B 与表面

张力 F_γ 的相对强弱^[34]. 积分计算式如下所示:

$$F_B = \iiint \rho[1 - \beta(T - T_L)]gdV, \quad (25)$$

$$F_\gamma = \iint \frac{\partial \gamma}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial r} dS. \quad (26)$$

计算结果如图5(d)所示. 合金熔体在冷却过程中, F_γ 始终明显大于 F_B . 在流场驱动力上, 由表面张力驱动的Marangoni对流起主要作用, 浮力驱动的自然对流相对较弱. 根据图5(a)~(c)所示的流场分布, 随冷却过程的进行, 熔体内部的流动随冷却过程迅速衰减, 熔体表面的流动则由于Marangoni对流的存在得以维持.

图5(e)为熔体内部流动速率 u 及温度 T 随时间的变化关系, 计算中采用的 u , T 值均为同一时刻下熔体内部的最大值. 在冷却过程开始后, 熔体温度与液相流动速率迅速降低. $t=2$ s时, u 降低至 $5 \times 10^{-2} \text{ m s}^{-1}$ 并维持在该数值附近. 由式(24)计算得雷诺数 Re 约为340. 根据已有的实验与计算结果, 合金熔体处于湍流状态时, 液相流动速率通常在 0.1 m s^{-1} 以上, 低于此速率时, 熔体内的流动状态由湍流向层流转变. 以Co-Cu合金为例, 熔体内的流动由湍流向层流转变时雷诺数的临界值 Re_c 约为600, 此时液相流动速率约为 0.03 m s^{-1} [35,36]. 由于

合金熔体密度与黏度的不同, 对于本文的 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金熔体, Re_c 会有一定的差异, 但应在 $10^2 \sim 10^3$ 的量级范围内, 相应的液相流动速率应在 0.1 m s^{-1} 以下. 由此判断在 $t=2$ s以后合金熔体内的流动状态已由湍流状态转变为层流状态.

图6(a)为电弧熔炼过程中的温度场分布, 熔炼过程中钨阴极与阳极间形成电弧, 极间气体被击穿并形成等离子体, 钨针尖附近的弧光放电更为显著, 局部最高温度超过 $1.6 \times 10^4 \text{ K}$, 同时在焦耳热的作用下将合金熔化, 在阳极区形成直径约5 mm的熔池. 图6(b)为熔体内的温度场, 熔体中心区域温度超过1700 K, 与电磁悬浮实验相比, 熔体内的温度梯度明显增大. 分别计算了熔炼过程中电弧力、重力以及表面张力驱动下熔体内的流场, 如图6(c)~(e)所示, 图中的箭头指向表示局部的液相流动方向. 在上述三种流场驱动力中, 电弧力驱动的液相流动最为强烈, 熔体自熔池中心向边缘区域流动, 最大流动速率 u_{Max} 为 $3.9 \times 10^{-1} \text{ m s}^{-1}$. 由表面张力驱动的Marangoni对流稍弱于电弧力驱动的流场且主要集中于熔体表面. 由浮力驱动的自然对流明显弱于上述两种驱动力形成的流场, 在整个熔池内部形成环形流场, u_{Max} 减小至 $1.2 \times 10^{-2} \text{ m s}^{-1}$. 在以上三

图6 (网络版彩图)电弧熔炼过程中的传热与流动规律. (a) 熔炼过程中的温度场; (b) 合金熔体内的温度分布; (c) 电弧力作用的流场; (d) 表面张力作用的流场; (e) 重力作用的流场

Figure 6 (Color online) Heat and flow characteristics during arc melting. (a) Temperature field during arc melting; (b) temperature distribution in alloy melt; (c) flow field driven by arc force; (d) flow field driven by surface tension; (e) flow field driven by gravity.

种驱动力的共同作用下, 熔体内形成强烈的湍流流动。

对电磁悬浮、感应熔炼与电弧熔炼三种实验方法中的湍流流动速率进行比较。在电磁悬浮条件下, 由于电磁场始终作用于悬浮熔体内部, 液相流动速率最高。而在电弧熔炼与感应熔炼实验过程中, 对于电弧熔炼与感应熔炼实验, 在冷却过程中关闭直流或高频电源, 合金熔体内的湍流逐渐衰减。由于电弧熔炼的冷却速率更大, 湍流的衰减程度低, 此外电弧熔炼过程中熔体内存在较高的温度梯度, 进而增强熔体内的自然对流与Marangoni对流, 相比之下电弧熔炼过程中的流场远强于感应熔炼过程。电磁悬浮、电弧熔炼和感应熔炼这三种湍流条件下, 液相流动速率依次递减。

与前三种实验方法相比, 在交流电阻熔炼过程中, 由于电磁场很弱, 熔体内的流动主要由驱动力较弱的浮力与表面张力引起, 液相流动速率较低。图7为电阻熔炼条件下的液固界面推移与流场演变过程。图中红色区域代表液相, 蓝色区域代表固相, 数值为该区域的液相体积分数, 黑色箭头为该区域的液相流动方向。在空冷条件下, 液固界面前沿自熔体侧壁向中心区域缓慢迁移, 迁移速率为 0.09 mm s^{-1} , 在剩余液相区域, 形成自熔体中心同液固界面前沿间的环形流场, 如图7(a)所示。在水冷条件下, 液固界面前沿自熔体底部向顶部区域迁移, 迁移速率显著增加至 0.76 mm s^{-1} 。在熔体上表面同液固界面前沿区域之间形成环形流场, 如图7(b)所示。在电阻熔炼过程中, 液相对流速率 u 不超过 0.04 m s^{-1} , 由式(24)计算得到 $Re \approx 257$, 合金熔

体始终处于层流状态。

根据无量纲量邦德数(Bond number, Bo)的值可以计算熔体内自然对流与Marangoni对流的相对强弱, Bo 表示为

$$Bo = \frac{\beta g \rho L^2}{|\partial \sigma / \partial T|} \quad (27)$$

当 $Bo < 1$ 时, 熔体内的流动由Marangoni对流主导^[37]。将表1给出的各个物理量的值带入上式中, 计算得到在电阻熔炼过程中, $Bo = 0.15$, 可知熔体内的流动主要由表面张力驱动。

3.2 合金熔体的凝固过程

图8为不同实验条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的冷却曲线。在电磁悬浮(electromagnetic levitation, EML)实验中通过红外温度仪对合金熔体的温度进行实时测定, 在其他方法中通过有限元方法对冷却过程中合金熔体内的温度场进行模拟, 从而获取合金熔体的冷却曲线, 在模拟时将合金熔体完整的凝固过程简化为一次相变过程。在本文所使用的实验方法中, 电阻熔炼(空冷)条件下的冷却速率最低, 凝固起始时刻前的冷却速率 R_c 仅为 2 K s^{-1} , 由于凝固时结晶潜热的释放, 凝固时冷却曲线上出现明显的温度平台。电磁悬浮条件下, 合金熔体的过冷度为 13 K , 合金熔体的冷却速率达到 10 K s^{-1} 。在凝固过程中, 合金熔体经历了两次再辉过程。由于 Ag_2Al 相与 (Al) 相之间的形核温度非常接近, 在冷却曲线上第一次再辉对应于 Ag_2Al 与 (Al) 相的形

图7 电阻熔炼条件下的液固界面推移与流场演变过程。(a) 空冷; (b) 水冷

Figure 7 Evolution of liquid solid interface and flow field in alloy melt under resistance melting condition. (a) Air cooling; (b) water cooling.

图 8 (网络版彩图)不同实验条件下Al₇₀Ag₂₀Ge₁₀合金的冷却曲线
Figure 8 (Color online) Cooling curves of Al₇₀Ag₂₀Ge₁₀ alloy under different experimental conditions.

成,第二次再辉对应于(AI)+(Ge)不规则共晶的形成^[24].感应熔炼与电阻熔炼(水冷)条件下的冷却速率相近,分别为11与15 K s⁻¹.在电弧熔炼条件下,由于合金熔体直接与水冷铜模接触,冷却速率显著提升至139 K s⁻¹.

3.3 物理场对旋涡状凝固组织形成的影响

对不同实验条件下的物理场特征进行了总结,定义旋涡密度 ρ_v 表示单位平方毫米内的旋涡数量,描述旋涡状凝固组织形成趋势的强弱,并根据 ρ_v 对上述实验方法进行排序,如表3所示.旋涡状凝固组织的形成主要受到温度场与流场的影响.旋涡密度 ρ_v 与冷却速率 R_c 呈正相关,对于 ρ_v 最高的电弧熔炼实验,其冷却速率是所有方法中最高的.随着 R_c 的降低, ρ_v 逐渐减小.对于 ρ_v 最低的电阻炉熔炼-空冷实验,其冷却速率同样

是以上实验方法中最低的.电磁悬浮实验进一步证实了冷却速率对旋涡状凝固组织形成的重要性.尽管在以上方法中,电磁悬浮条件下熔体内的液相流动速率最高,但由于冷却速率较低,亚稳Ag₂Al枝晶难以大量形成, ρ_v 仅为1.0 mm⁻².而在自由落体条件下,尽管液相流动速率远低于电磁悬浮实验,但由于冷却速率很高(10² K s⁻¹< R_c <10⁴ K s⁻¹),液滴内旋涡密度 ρ_v 的平均值仍可达到2.8 mm⁻²^[24].结合图8中的冷却曲线,悬浮熔体的第一次再辉过程对应于Ag₂Al与(AI)相的形成,Ag₂Al相作为初生相的生长优势并未凸显.由此可知,当冷却速率较低时,亚稳Ag₂Al相与(AI)相几乎同时形核并生长,旋涡状凝固组织难以形成.随冷却速率增大,亚稳Ag₂Al相作为初生相首先形核并快速生长, ρ_v 显著增大.

不同实验条件下液相流动的驱动力大小通过液相流动速率确定,即在液相流动速率较高的情形下,液相流动驱动力较强.尽管 ρ_v 与液相流动速率之间并不完全满足正相关的关系,流场驱动力的强弱仍然对亚稳Ag₂Al枝晶的生长动力学产生影响,并进一步改变Ag₂Al枝晶的生长形态.图9为不同实验条件下旋涡直径分布特征,每种实验条件下的统计值均用Gauss函数进行拟合.在电磁悬浮、感应熔炼与电弧熔炼三种湍流情形下,形成的旋涡状结构的直径主要分布范围在800 μm以下,集中分布于400~800 μm范围内.电弧熔炼条件下形成的旋涡状结构分布最为集中,约26%的旋涡状结构处于550~650 μm范围内.而在电阻熔炼实验时,液相流动由驱动力较弱的表面张力与浮力驱动,熔体内的液相流动为驱动力较弱的层流状态,形成的旋涡直径大多在800 μm以上,且直径的分布范围更加宽泛,部分旋涡直径甚至超过1500 μm,即在较强的流场驱动力作用下,初生Ag₂Al枝晶生长时的曲率半径减

表 3 不同实验条件下的物理场特征与旋涡密度
Table 3 Physical field characteristic and vortex density under different experimental conditions

实验方法	旋涡密度 ρ_v (mm ⁻²)	冷却速率 R_c (K s ⁻¹)	冷却方式	液相流动速率 u (m s ⁻¹)	液相流动的主要驱动力	冷却过程中的流动状态
电弧熔炼	12.9	139	铜模冷却	0.39~0.2	电弧力	湍流
电阻熔炼(水冷)	2.2	15	自然对流	0.04	表面张力+浮力	层流
感应熔炼	1.4	11	自然对流	0.05	洛伦兹力	湍流→层流
电磁悬浮	1.0	10	强制对流	0.3	洛伦兹力	湍流
电阻熔炼(空冷)	0.4	2	自然对流	0.004	表面张力+浮力	层流

图 9 (网络版彩图)不同实验条件下旋涡直径的分布特征
Figure 9 (Color online) Distribution characteristics of vortex diameter under different experimental conditions.

小, 形成的旋涡状结构更加小型化。

3.4 旋涡状凝固组织特征

3.4.1 电磁悬浮

通过电磁悬浮、感应熔炼、电弧熔炼三种实验方法, 研究湍流流动条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的凝固组织形成规律. 与另外两种实验方法相比, 在电磁悬浮条件下, 由于悬浮熔体在熔凝过程中始终受到电磁力的作用, 液相对流速率最高. 对过热熔体上下表面同时吹 He 气进行冷却, 并分别观察了样品纵剖面中心与边缘区域, 所属区域与图1(a)中标注的区域一致. 图10(a)为三元 $\text{Al}-\text{Ag}-\text{Ge}$ 合金相图^[38], 实验所选择的 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 成分点已在图上标出. 由于该成分点位于 (Al) 相区, 近平衡条件下的初生相为 (Al) 相, 已通过示差扫描量热法(DSC)实验证实^[24]. 样品中心区域的凝固组织由初生 (Al) 枝晶、 Ag_2Al 枝晶以及 $(\text{Al})+(\text{Ge})$ 不规则共晶构成, 少量 Ag_2Al 以片状形态生长, 如图10(b)所示, 该组织与近平衡条件下的凝固组织类似. 而在样品边缘区域 (Al) 相与 Ag_2Al 相的形核与生长次序发生转变, Ag_2Al 相开始取代 (Al) 相作为初生相首先形核, 并形成弯曲生长的长条状枝晶. (Al) 相由较为粗大的枝晶向等轴晶转变, 并依附于 Ag_2Al 枝晶两侧生长, 如图10(c)所示. 液滴内部未完全形成旋涡状凝固组织, 旋涡密度 ρ_v 较低, 仅为 1.0 mm^{-2} . 由于凝固过程中, 固液界面前沿自熔体边缘向熔体中心迁移, 凝固过程中释放的结晶潜

图 10 (网络版彩图)电磁悬浮条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的凝固组织. (a) $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金在相图^[38]中的位置; (b) 样品中心区域; (c) 边缘区域

Figure 10 (Color online) Microstructures of $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ alloy solidified under electromagnetic levitation condition. (a) Location of $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ alloy in phase diagram ^[38]; (b) central area of sample; (c) edge area of sample.

热会使熔体中心区域的冷却速率降低, 导致亚稳 Ag_2Al 枝晶的形成受到抑制, 而边缘区域的冷却速率较高, 且具有更高的液相流动速率, 因此旋涡状凝固组织仅在该区域形成。

3.4.2 感应熔炼

感应熔炼后合金纵剖面处的凝固组织如图11所示. 仅在样品纵剖面下部观察到旋涡状凝固组织形成,

图 11 (网络版彩图)感应熔炼条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的凝固组织。(a) 样品纵截面凝固组织; (b) A区域放大

Figure 11 (Color online) Microstructures of $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ alloy by induction melting. (a) Microstructures at the longitudinal section of sample; (b) enlargement of area A.

如图11(a)所示。与电磁悬浮熔炼过程相比,旋涡组织的分布位置存在差异,感应熔炼后的旋涡组织主要分布于熔体下部区域,电磁悬浮条件下旋涡组织主要分布于样品边缘区域,这与冷却过程中温度场的差异有关。感应熔炼结束后合金熔体主要通过熔体底部的坩埚进行冷却,固液界面前沿由熔体底部向顶部方向推进,凝固过程中释放的结晶潜热使剩余熔体的冷却速率降低,因此熔体下方区域的冷却速率比上方区域稍快,在较低的冷却速率下亚稳旋涡状 Ag_2Al 枝晶的生长受到抑制,在样品纵剖面上部区域旋涡状凝固组织消失。在电磁悬浮条件下合金熔体主要通过熔体表面通过的惰性气体进行冷却,样品表面附近区域冷却速率较高,旋涡组织主要分布于该区域。与电弧熔炼过程相比,由于冷却速率显著降低,旋涡状 Ag_2Al 枝晶的形成明显受到抑制,旋涡密度 ρ_v 锐减至 1.4 mm^{-2} 。旋涡状凝固组织仍然由初生 Ag_2Al 枝晶、 $\text{Ag}_2\text{Al}+(\text{Al})$ 不规

则共晶以及 $(\text{Al})+(\text{Ge})$ 共晶构成,如图11(b)所示。

3.4.3 电弧熔炼

对电弧熔炼后 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金样品进行了分析,沿重力方向将样品自中轴线处切开,观察纵剖面处的凝固组织,如图12所示。与电磁悬浮实验相比,尽管液相流动速率稍弱,但冷却速率由 10 K s^{-1} 提升至 139 K s^{-1} ,凝固组织中的旋涡密度 ρ_v 显著增加至 12.9 mm^{-2} ,旋涡的完整度也明显提升。由此可知旋涡状凝固组织的形成受到液相流动速率与冷却速率的共同影响。

旋涡状结构中各相的生长方式与旋涡状结构的直径 ϕ 相关,随 ϕ 减小,各相之间的竞争形核与生长更加显著。对于直径 ϕ 为 $556 \mu\text{m}$ 的旋涡,旋涡内部的凝固组织由初生 (Al) 枝晶、 Ag_2Al 枝晶以及 $(\text{Al})+(\text{Ge})$ 不规则共晶构成,如图12(a)所示。当旋涡直径 ϕ 减小至 $227 \mu\text{m}$ 时,旋涡内部的 (Al) 相以及 Ag_2Al 相逐渐由枝晶向等轴晶形态转变, Ag_2Al 等轴晶富集生长的现象较为显著。 (Al) 与 Ag_2Al 相竞争生长并形成 $(\text{Al})+\text{Ag}_2\text{Al}$ 的不规则共晶,如图12(b)所示。随旋涡直径进一步减小至 $141 \mu\text{m}$ 时, (Al) 相以及 Ag_2Al 相完全转变为等轴晶形态,各相之间的竞争生长现象更加显著,形成不规则的 $(\text{Al})+\text{Ag}_2\text{Al}+(\text{Ge})$ 三相共晶,如图12(c)和(d)所示。根据图9的统计分析,在电弧熔炼过程中,流场驱动力较强,凝固组织中趋向于形成图12(c)和(d)所示的小型旋涡,即合金熔体在凝固过程中,较强的流场驱动力使各相之间的竞争形核与生长更加激烈,并导致不规则三相共晶形成。

3.4.4 电阻熔炼

电阻熔炼实验中液相流动力包括表面张力驱动的Marangoni对流与浮力驱动的自然对流,与另外三种熔炼方式相比,流场驱动力较弱,液相流动速率显著降低。分别在空冷与水冷两种冷却条件下对 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的凝固组织进行了研究。在空冷条件下,液相流动速率与冷却速率较低,亚稳 Ag_2Al 枝晶的形成受到抑制,旋涡密度 ρ_v 仅为 0.4 mm^{-2} 。在低速流动与慢速凝固条件下, Ag_2Al 相难以取代 (Al) 相成为初生相,在样品纵截面上部区域 (Al) 相作为初生相首先形核并形成粗大枝晶, Ag_2Al 相随后形核并形成常规枝晶或以片状晶形态生长,如图13(a)所示。但在空冷条件下,合金熔体

在凝固过程中仍然受到表面张力驱动的Marangoni对流与浮力驱动的自然对流的影响,在样品纵截面底部区域,由于冷却速率较大,液相流动速率随之增加, Ag_2Al 相开始取代近平衡条件下的 (Al) 首先形核,并以特殊的亚稳旋涡状枝晶形态生长, (Al) 相形成等轴晶依附于旋涡状 Ag_2Al 枝晶两侧,并与正在形核长大的 Ag_2Al 相形成不规则共晶,如图13(b)所示.在水冷条件下,冷却速率由 2 K s^{-1} 增大至 15 K s^{-1} ,熔体内的温度梯度增大,液相流动随之增强,旋涡密度 ρ_v 增加至 2.2 mm^{-2} , Ag_2Al 相完全取代 (Al) 相成为初生相,并以完整的旋涡状枝晶形态生长,如图13(c)所示.

3.5 旋涡状凝固组织形成机理

$\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金在凝固过程中形成的特殊旋涡状凝固组织,是液相流动与快速凝固条件共同作用下的结果.图14展示了旋涡状凝固组织的形成过程.在凝固起始阶段, (Al) 相与 Ag_2Al 相之间存在激烈的竞争

形核与生长现象.不同于常规慢速凝固情形,在快速流动的作用下,合金熔体内的形核与生长次序发生转变, Ag_2Al 相取代近平衡条件下的 (Al) 相首先形核,随后 (Al) 相依附于初生 Ag_2Al 相形核,如图14(a)所示.液相流动继续作用于枝晶生长阶段并对亚稳 Ag_2Al 枝晶的生长形态产生显著影响. Ag_2Al 枝晶在生长过程中保留了凝固过程中剩余熔体内的流场运动形态,并以特殊的旋涡状枝晶形态生长, (Al) 枝晶继续依附于 Ag_2Al 枝晶两侧长大,如图14(b)所示.在快速凝固与液相流动的共同影响下,亚稳旋涡状 Ag_2Al 枝晶迅速长大并形成较为完整的旋涡状结构, (Al) 相逐渐长大并在 Ag_2Al 枝晶周围形成大量等轴晶,如图14(c)所示.

这种旋涡状组织的形成与 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金熔体黏度值较低的特性密切相关,并且受到快速凝固条件的影响.在液相流动与快速凝固的耦合作用下,亚稳 Ag_2Al 相以旋涡状枝晶形态迅速生长,最终形成特殊的旋涡状凝固组织.

图 12 (网络版彩图)电弧熔炼条件下不同直径旋涡的凝固组织形貌. (a) $\phi=556\text{ }\mu\text{m}$; (b) $\phi=227\text{ }\mu\text{m}$; (c), (d) $\phi=141\text{ }\mu\text{m}$
Figure 12 (Color online) Microstructures of vortices with different diameters. (a) $\phi=556\text{ }\mu\text{m}$; (b) $\phi=227\text{ }\mu\text{m}$; (c), (d) $\phi=141\text{ }\mu\text{m}$.

图 13 (网络版彩图)电阻熔炼条件下 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金的凝固组织. (a), (b) 空冷; (c) 水冷
Figure 13 (Color online) Microstructures of $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ alloy solidified under resistance melting condition. (a), (b) Air cooling; (c) water cooling.

图 14 (网络版彩图)旋涡状凝固组织形成机理. (a) Ag_2Al 相形核; (b) Ag_2Al 枝晶生长; (c) 旋涡状组织形成

Figure 14 (Color online) Formation mechanism of vortex-shaped microstructure. (a) Ag_2Al phase nucleation; (b) Ag_2Al dendrite growth; (c) vortex-shaped microstructure formation.

4 结论

采用电磁悬浮、感应熔炼、电弧熔炼、电阻熔炼等四种实验技术,并结合有限元数值计算方法,对 $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ 合金熔凝过程中的液相流动机制与旋涡组织形成规律进行了研究.主要得到以下结论.

(1) 旋涡组织的形成是液相流动与快速凝固共同作用的结果.液相流动为亚稳 Ag_2Al 枝晶的形核生长提供驱动力,在快速凝固过程中亚稳 Ag_2Al 枝晶以旋涡状形态迅速长大并保留合金熔体内的流场运动形态.

(2) 凝固过程中的液相流动速率与冷却速率决定 Ag_2Al 与 (Al) 相形核次序与生长方式,进而对旋涡状组织的形成产生影响.在低速流动与慢速凝固条件下, (Al) 相作为初生相首先形核,合金凝固路径与近平衡条件下相似,旋涡状结构难以形成.随液相流动速率

与冷却速率的增加, Ag_2Al 相逐步取代 (Al) 相成为初生相并形成完整的旋涡状组织.

(3) 加热条件决定液相流动的驱动力.合金熔体在电磁加热过程中受洛伦兹力驱动引起强烈湍流,电弧熔炼过程中的湍流由电弧力引起,而在电阻熔炼时,由表面张力驱动的Marangoni对流与浮力驱动的自然对流使熔体处于流速较低的层流状态.随流场驱动力增强,亚稳 Ag_2Al 枝晶生长时的曲率半径减小,旋涡状结构内部各相之间的竞争形核与生长更加显著,最终完全形成不规则三相共晶.

(4) 凝固组织中的旋涡密度受冷却速率影响.在较低的冷却速率下, Ag_2Al 相与 (Al) 相几乎同时形成, Ag_2Al 相作为初生相的生长优势并不凸显,旋涡密度较低.在快速凝固条件下,初生 Ag_2Al 相迅速生长并形成旋涡状枝晶,旋涡密度显著增加.

致谢 实验过程中得到肖瑞麟、李路远、李星吾等同事的帮助,在此深表谢忱.

参考文献

- 1 Kurz W, Fisher D J. Fundamentals of Solidification. Zurich: Trans Tech Publications, 1998
- 2 Wang H P, Lü P, Cai X, et al. Rapid solidification kinetics and mechanical property characteristics of Ni-Zr eutectic alloys processed under electromagnetic levitation state. *Mater Sci Eng-A*, 2020, 772: 138660
- 3 Fan Z, Zhao Y, Tan Q, et al. Nanostructured Al_2O_3 -YAG-ZrO₂ ternary eutectic components prepared by laser engineered net shaping. *Acta Mater*, 2019, 170: 24–37
- 4 de Gouveia G L, Kakitani R, Gomes L F, et al. Slow and rapid cooling of Al-Cu-Si ultrafine eutectic composites: Interplay of cooling rate and microstructure in mechanical properties. *J Mater Res*, 2019, 34: 1381–1394

- 5 Mohammadpour P, Plotkowski A, Phillion A B. Revisiting solidification microstructure selection maps in the frame of additive manufacturing. *Addit Manuf*, 2020, 31: 100936
- 6 Jackson K A, Hunt J D. Lamellar and rod eutectic growth. *Trans Metall Soc Aime*, 1966, 236: 1129–1142
- 7 Trivedi R, Magnin P, Kurz W. Theory of eutectic growth under rapid solidification conditions. *Acta Metall*, 1987, 35: 971–980
- 8 Kurz W, Trivedi R. Eutectic growth under rapid solidification conditions. *Metall Trans A*, 1991, 22: 3051–3057
- 9 Asta M, Beckermann C, Karma A, et al. Solidification microstructures and solid-state parallels: Recent developments, future directions. *Acta Mater*, 2009, 57: 941–971
- 10 Zhang A, Du J, Guo Z, et al. Dependence of lamellar eutectic growth with convection on boundary conditions and geometric confinement: A phase-field lattice-boltzmann study. *Metall Mater Trans B*, 2019, 50: 517–530
- 11 Xu X H, Chen M W, Wang Z D. Effect of weak convection on the rod eutectic growth in direction solidification (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2016, 65: 215–222 [徐小花, 陈明文, 王自东. 弱熔体对流对定向凝固中棒状共晶生长的影响. *物理学报*, 2016, 65: 215–222]
- 12 Chankitmongkorn S, Eskin D G, Limmaneevichitr C. Structure modification upon ultrasonic processing of an AA4032 piston alloy: Comparison of permanent mold and direct-chill casting. *Metall Mater Trans A*, 2020, 51: 818–829
- 13 Mallya N, Haussener S. Buoyancy-driven melting and solidification heat transfer analysis in encapsulated phase change materials. *Int J Heat Mass Transfer*, 2021, 164: 120525
- 14 Zhu Z, Ma X, Jiang P, et al. Planar-cellular-dendritic transformation in the fusion zone of a GH909 superalloy weldment. *J Mater Res Tech*, 2021, 10: 960–975
- 15 Moniz L, Chen Q, Guillemot G, et al. Additive manufacturing of an oxide ceramic by laser beam melting—Comparison between finite element simulation and experimental results. *J Mater Process Tech*, 2019, 270: 106–117
- 16 Lee J, Lim Y R, Katiyar A K, et al. Direct synthesis of a self-assembled $\text{WSe}_2/\text{MoS}_2$ heterostructure array and its optoelectrical properties. *Adv Mater*, 2019, 31: 1904194
- 17 Yin Z G, Zhang X W, Wu J L. Growth of III-V semiconductor crystals under microgravity (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2020, 50: 047003 [尹志岗, 张兴旺, 吴金良. III-V 族半导体微重力生长研究进展. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2020, 50: 66–78]
- 18 Li W, Jiang H, Zhang L, et al. Solidification of Al-Bi-Sn immiscible alloy under microgravity conditions of space. *Scripta Mater*, 2019, 162: 426–431
- 19 Liu S, Jie J, Dong B, et al. Novel insight into evolution mechanism of second liquid-liquid phase separation in metastable immiscible Cu-Fe alloy. *Mater Des*, 2018, 156: 71–81
- 20 Ezquerro J M, Salgado Sánchez P, Bello A, et al. Experimental evidence of thermocapillarity in phase change materials in microgravity: Measuring the effect of Marangoni convection in solid/liquid phase transitions. *Int Commun Heat Mass Transfer*, 2020, 113: 104529
- 21 Ruan Y, Hu L, Yan N, et al. Recent advances and future perspectives of space materials science (in Chinese). *Sci Sin Tech*, 2020, 50: 603–649 [阮莹, 胡亮, 闫娜, 等. 空间材料科学研究进展与未来趋势. *中国科学: 技术科学*, 2020, 50: 603–649]
- 22 Fan H L, Chen M W. Effect of magnetic field on stability in mushy layer during binary alloy solidification (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2021, 70: 284–291 [范海龙, 陈明文. 磁场对二元合金凝固过程中糊状层稳定性的影响. *物理学报*, 2021, 70: 284–291]
- 23 Ruan Y, Wang Q Q, Chang S Y, et al. Structural evolution and micromechanical properties of ternary Al-Ag-Ge alloy solidified under microgravity condition. *Acta Mater*, 2017, 141: 456–465
- 24 Li H R, Ruan Y. Live record of vortex-shaped flow by microgravity solidification. *Mater Des*, 2021, 209: 109979
- 25 Gale W F, Totemeir T C. *Smithells Metals Reference Book*. 8th ed. Burlington: Elsevier Butterworth-Heinemann, 2004
- 26 Voller V R, Prakash C. A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems. *Int J Heat Mass Transfer*, 1987, 30: 1709–1719
- 27 Ranz W E, Marshall W R. Evaporation from drops. I. *Chem Engng Prog*, 1952, 48: 141–146
- 28 Kovitya P, Lowke J J. Two-dimensional analysis of free burning arcs in argon. *J Phys D-Appl Phys*, 1985, 18: 53–70
- 29 Lowke J J, Morrow R, Haidar J. A simplified unified theory of arcs and their electrodes. *J Phys D-Appl Phys*, 1997, 30: 2033–2042
- 30 Tanaka M, Terasaki H, Ushio M, et al. A unified numerical modeling of stationary tungsten-inert-gas welding process. *Metall Mat Trans A*, 2002, 33: 2043–2052
- 31 Incropera F P, DeWitt D P, Bergman T L, et al. *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. 6th ed. New York: John Wiley & Sons, 2006
- 32 Traidia A, Roger F, Schroeder J, et al. On the effects of gravity and sulfur content on the weld shape in horizontal narrow gap GTAW of stainless

- steels. *J Mater Process Tech*, 2013, 213: 1128–1138
- 33 Baker E B, Nawer J, Xiao X, et al. MHD surrogate model for convection in electromagnetically levitated molten metal droplets processed using the ISS-EML facility. *npj Microgravity*, 2020, 6: 9
- 34 Wu F, Falch K V, Guo D, et al. Time evolved force domination in arc weld pools. *Mater Des*, 2020, 190: 108534
- 35 Hyers R W, Trapaga G, Abedian B. Laminar-turbulent transition in an electromagnetically levitated droplet. *Metall Materi Trans B*, 2003, 34: 29–36
- 36 Kitahara T, Tanada K, Ueno S, et al. Effect of static magnetic field on recalescence and surface velocity field in electromagnetically levitated molten CuCo droplet in undercooled state. *Metall Materi Trans B*, 2015, 46: 2706–2712
- 37 Thokchom A K, Gupta A, Jaijus P J, et al. Analysis of fluid flow and particle transport in evaporating droplets exposed to infrared heating. *Int J Heat Mass Transfer*, 2014, 68: 67–77
- 38 Villars P, Prince A, Okamoto H. Handbook of Ternary Alloy Phase Diagrams. Materials Park: ASM International, 1995

Fluid flow and vortex-shaped structure formation mechanisms of Al-Ag-Ge alloy

LI HaoRan, RUAN Ying & WEI BingBo

School of Physical Science and Technology, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China

Fluid flow and solidification mechanisms of $\text{Al}_{70}\text{Ag}_{20}\text{Ge}_{10}$ alloy were systematically investigated using electromagnetic levitation, induction, arc, and resistance melting techniques coupled with finite element simulation method. A unique type of vortex-shaped microstructure was formed in these four experiments. This was different from the result under slow solidification conditions. The formation of the vortex-shaped structure was affected by fluid flow and cooling rate of alloy melt. The Lorentz force caused turbulent flow in alloy melt, while the turbulent flow during arc melting was driven by arc force under electromagnetic levitation or induction melting conditions. The surface tension and buoyancy force caused laminar flow in alloy melt during the resistance melting process. Due to rapid flow, the Ag_2Al phase nucleated ahead of the Al phase, primarily under near-equilibrium conditions. The metastable Ag_2Al dendrites grew as vortex-shaped morphology and preserved the melt flow pattern during solidification. The increased cooling rate caused a rapid growth of metastable Ag_2Al dendrites with increased vortex density. The curvature radius of metastable Ag_2Al dendrites decreased with enhanced melt flow; meanwhile, the more drastic nucleation and growing competition among phases occurred. Finally, irregular Al, Ag_2Al , and Ge ternary eutectics fully formed inside the vortex-shaped structure.

fluid flow, cooling rate, eutectic, rapid solidification, solidification microstructure

doi: [10.1360/SST-2022-0009](https://doi.org/10.1360/SST-2022-0009)