T&146-21 T&111-4

(3) 102/-1024 Al-Li 合金定向凝固的热溶质对流\*

## 彭德林 安阁英

(哈尔滨工业大学材料科学与工程学院,哈尔滨 150001)

摘 要 研究了亚共晶二元 Al-Li 合金垂直向上定向凝固期间热溶质对流对共晶生长的影响。结果表明、晶体生长初期,对流 对共晶生长影响较小、能够获得规则的共晶组织、当存在非稳定性对流时、在生长方向上, β 相 (AlLi) 呈非连续的短棒结构,在 水平方向上、 β 相呈波形排列 并且还发现、非稳定性对流中存在着最不稳定波、且这种波对共晶生长的影响最强烈、它使共晶组 织粗大,并且迎着流体流动方向生长,

**关键词** 热溶质对流,共晶生长,定向凝固, Al-Li 合金 中图法分类号 TG111.4, TG146.21 文献标识码 A 文章编号 0412-1961(2000)10-1021-04

# THERMOSOLUTAL CONVECTION DURING DIRECTIONAL SOLIDIFICATION OF Al-Li ALLOYS

PENG Delin, AN Geying School of Materials Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001 Correspondent: PENG Delin, senior engineer, Tel: (0451)6413931, Fax: (0451)6412817, E-mail: pengdl@public.hr.bhl.cn Manuscript received 2000-04-06, in revised form 2000-06-16

**ABSTRACT** The effect of thermosolutal convection on eutectic growth was studied during vertically upward directional solidification of binary hypoeuectic Al-Li alloys. It is shown that the effect of convection on eutectic growth is little at the initial stage, and the regular eutectic structure can be obtained. Unstable convection may have a strong influence on eutectic growth, and  $\beta$  phase showed noncontinuous short rodlike structure in the vertical direction. A wave-like arrangement of  $\beta$  phase exists in the horizontal direction. Moreover, there is most unstable wave in the unstable convection during crystal growth. The effect of the most unstable wave on eutectic growth is strongest, which make the eutectic structure coarse and crystal grow against the direction of fluid flow.

KEY WORDS thermosolutal convection, eutectic growth, directional solidification, Al-Li alloy

流体流动对晶体生长和材料性能的影响是近年来非 常活跃的研究领域 [1-6]。定向凝固条件下,流体流动是 由水平方向的温度和浓度梯度引起的。在水平方向无温度 梯度和浓度梯度的情况下,由于热溶质的不稳定性也发生 流体流动,甚至流体密度随着高度方向的减小也发生流体 流动,对二元合金垂直定向凝固线性稳定性的分析证明了 自然对流和形态不稳定性的发生<sup>[7-17]</sup>。

在垂直定向凝固过程中, 如果在固 – 液界面前沿被排 斥出的溶质比溶剂轻、或者优先结合的溶质比溶剂重、将 在垂直方向上产生大量溶质浓度梯度,从而引起自然的或 者有浮力的对流, 通常称之为双重扩散或热溶质对流 <sup>[13]</sup>. Al-Li 合金中、溶质元素 Li 的密度只有 0.53 g/cm<sup>3</sup>, 是 溶剂元素 Al 密度 (2.7 g/cm<sup>3</sup>) 的 20%. 此种合金在垂直 向上定向凝固时,固-液界面前热溶质极不稳定,给制备 优质材料带来不便,而且,对亚共晶 Al-Li 合金保持稳定 的平面前沿形态,获得共晶组织结构更加困难.

本文对亚共晶二元 Al-Li 合金 (共晶点为 8.2%Li), 在垂直向上的定向凝固过程中热溶质对流对共晶生长的 影响进行了研究。

2 实验方法

选用高纯 Al(99.999%) 和高纯 Li(99.99%) 配制合 金. 合金在高纯氩气和熔剂 (LiCl+LiF) 保护下熔炼、铸 型及坩埚均由高纯石墨材料制成. 预制铸锭尺寸为: 直径

<sup>\*</sup> 收到初稿日期: 2000--04--06, 收到修改稿日期: 2000--06--16 作者简介: 彭德林、男、 1953 年生、高级工程师、硕士

6 mm、长度 100 mm. 铸锭经 8 h 均匀化处理. 配制后 的铸锭 No.1—No.10 中 Li 含量 (质量分数. %,下同) 分别为: 6.51. 6.72, 6.94, 7.01, 7.20, 7.41, 7.64, 7.81, 7.90 和 8.05.

在重力条件下,使用垂直向上的定向凝固装置,实验 在系统抽真空后充入高纯氩气保护下进行,晶体生长速度 为 0.01—100 μm/s,以液态 Ga-In 合金及恒温循环水作 冷却系统,最高温度梯度为 200 K/cm.通过快淬方法保 留界面形态,金相试样使用刚玉研磨膏及三氯乙烯溶剂抛 光处理.金相试样取样时,取与生长方向平行剖面以观察 纵向形貌,取与生长方向垂直剖面以观察横向形貌、

## 2 实验结果及讨论

图 1 是 Al-8.05%Li 合金 (No.10), 在晶体生长初始 阶段的共晶生长组织形貌. 假定在固 - 液界面邻近的某一 长度之内、液体流动是逐渐变化的, 这个长度称为动量边 界层. 此合金接近共晶成分、对流对晶体生长时的结构和 成分的直接作用较小. 因为此时、发生溶质再分配的边界 层厚度比对流引起的动量边界层小得多. 共晶生长溶质边 界层向外延伸范围与共晶相间距具有相同量级. 对流只起



图 1 Al-8.05Li 合金的共晶组织形貌

Fig.1 Morphologies of sutsetic structure in Al-8.05Li alloy (sample No.10)  $G_{\rm L}$ =178 K/cm R=3.3  $\mu$ m/s

- (a) vertical direction
- (b) transverse direction

到固 - 液界面上热扰动的间接作用. 另外, 流体流动、 浓度和温度三者之间的数学联系是依赖于时间的非线性 微分方程. 在晶体生长的初始阶段, 对流是极微弱的. 不 足以对晶体生长造成大的影响. 从图 1a 可见, 在晶体生 长方向即垂直方向上, 晶体基本保持完整的共晶结构, 大 多数 β 相 (AlLi) 呈连续的棒状形态, 只有极少数 β 相 呈非连续形态, 非连续状态的 β 相长度与直径之比约为 (35—40) : 1; 在水平方向上 (图 1b), β 相的排列无明 显变化规律. 可以认为晶体是以稳定共晶方式生长, 保持 着如图 2 所示的稳定的平面固 - 液界面形态.



图 2 Al-8.05%Li 合金稳定的平面式固 - 液界面形态

Fig.2 Morphology of stable solid/liquid planar interface of Al-8.05%Li alloy (sample No.10)
 G<sub>L</sub>=178 K/cm R=3.3 µm/s

由于晶体生长过程中,在固 - 液界面处.  $\alpha$ 相生长时 从液相中排出溶质 Li 原子,  $\beta$  相生长时排出 Al 原子, 因此,在  $\alpha$  相前面聚集起 Li 原子,而在  $\beta$  相之前则形 成 Li 原子的贫化.由于  $\alpha$  相占整个晶体体积分数的大部 分,所以,在固 - 液界面前形成了溶质边界层.固 - 液 界面处不断排斥出的溶质 Li 原子,其密度较溶剂小,形 成了热溶质的不稳定性.固 - 液界面前溶质边界层中的 液体密度远低于边界层以外 (界面上方)的液体密度.并 且在溶质边界层中.从固 - 液界面开始形成向上减小的 溶质浓度梯度.反映到液体上是向上增加的密度梯度.即 在溶质边界层内液体的密度随着与固 - 液界面距离的增 如面增加,因为在重力场条件下,密度较小的液体向上运 动,密度较大的液体向下运动.所以引起二元 Al-Li 合金 的自然对流.

图 3 是在热溶质对流条件下 Al-7.81Li 合金 (No.8) 的共晶组织形貌。从图可见、沿着生长方向, β 相的连续 生长已完全消失、全部呈短棒结构, 其长径比约为 20 : 1;并且在水平方向 β 相的排列呈波形分布。但这种波形 分布仅是以规则的波形在局部存在、即在同一局部内, 波 长和周期是相同的; 面在不同的位置, 波长和周期是不同



图 3 AI-7.81Li 合金凝固中存在热溶质对流时的共晶组织形貌

Fig.3 Morphology of eutectic structure when exists thermosolutal convection during solidification of Al-7.81Li alloy (sample No.8)
 G<sub>L</sub>=178 K/cm, R=3.3 μm/s

的.经过大量观察发现,在定向凝固圆柱形试样中,从轴中心线开始,半径相差较大的位置波长和周期是不同的,只有在半径相等或相近的位置波长和周期才是相同或相近的.这说明在垂直向上定向凝固时,在固 - 液界面前 圆柱形液体中,热溶质对流在水平方向的波长和周期是以轴中心线为对称轴,半径相等的位置对流强度是相同的.而半径不等的位置对流强度则不相同.尽管热溶质对流对共晶生长形貌产生了如图 3 所示的强烈影响,当对流作用不足以使固 - 液界面形态发生改变时,固 - 液界面将仍 然象图 4 所示那样保持稳定的平面形态.

文献 [12—17] 对晶体生长形态非稳定性和对流非稳 定性的耦合进行了线性稳定性分析,结果表明,非稳定性 对流中存在最不稳定的波,而且这一最不稳定波对耦合结 果的影响比最不稳定的形态大得多.本研究中,证明了热 溶质对流中最不稳定波的存在,如图 5 快速淬火保留的





Fig.4 Morphology of solid/liquid interface when exists thermosolutal convection during solidification of Al-7.81Li alloy (sample No.8) G<sub>L</sub>=178 K/cm, R=3.3 μm/s



图 5 最不稳定波的形貌 Fig.5 Morphology of most unstable wave

固 - 液界面形态所示,在固 - 液界面前液体溶质边界层 (D<sub>L</sub>/R) 范围内, 淬火保留的组织为共晶结构, 但是可以 明显看出、各部位的共晶组织是不均匀的。这表明了液体 中溶质浓度的不均匀性,图5中最为显著的特征是、与圆 柱形液体轴线约成 30° 角方向、存在着局部溶质严重偏析 现象 (白色部位溶质浓度低,黑色部位溶质浓度高)。可以 认为此处就是热溶质对流中的最不稳定波,与垂直轴线成 角度偏析的方向是流体流动方向、在已经凝固的晶体中、 与最不稳定波相对应处、生长出的晶体特征也发生了显著 的变化. 就象在离心铸造时晶体迎着液体相对运动方向生 长一样、 在固 – 液界面发生最不稳定波处、晶体迎着流体 流动方向生长、这是因为:迎着流体流动方向 Li 原子沉 积的机会较多, 在这个方向上 β 相生长较快; 而背着流体 流动方向 Li 原子沉积的机会较少,在这个方向上 β 相生 长较慢,所以在最不稳定波存在处,晶体迎着流体流动方 向生长,而不是沿着定向冷却相反的方向生长.并且 /3 相 形态粗大且间距加宽, 因为共晶相间距与固 – 液界面处过 冷度和生长速度有关, 定向凝固平面界面生长时, 系统中 生长速度是相同的.最不稳定波发生处的生长速度并未改 变,只有当此处过冷度发生变化时才造成相间距加宽,这 种热溶质对流最不稳定波的存在,极大地破坏了晶体组织 的均匀性,与一般的对流相比,将对材料产生更加不良的 影响.

### 3 结论

(1) 热溶质对流对接近共晶成分的合金及晶体生长初 期影响不明显。

(2) 热溶质对流对亚共晶二元 Al-Li 合金共晶生长的 影响表现为:在晶体生长方向上, β 相呈非连续的短棒 结构;在水平方向上, β 相呈波形排列.

(3) 在热溶质对流中,存在最不稳定的波.这种最不 稳定的波使局部共晶组织粗大、相间距变宽,并使晶体迎 着流体流动方向与系统定向凝固方向倾斜生长.

#### 参考文献

- [1] Tewari S N, Shan R. Metall Mater Trans, 1996; 27A: 1353
- [2] Tewari S N, Chopra M A. Metall Trans, 1992; 23A: 3383
- [3] Huang H W, Heinrich T C. Poirier D R. Modell Simul Mater Sci Eng, 1996; 4: 245
- [4] Tewari S N, Shan R, Chopra M A. Metall Trans, 1993; 24A: 661
- [5] Chen C F, Chen F J. Fluid Mech, 1991; 227: 567
- [6] Sarazin J R, Hellawell A. Metall Trans, 1988; 19A: 1861
- [7] Hurle D T J, Jakeman E, Wheller A A. Phys Fluids, 1983; 26: 624
- [8] Hurle D T J, Jakeman E, Wheeler A A. J Cryst Growth, 1982; 58: 163
- [9] McFadden G B, Coriell S R, Boisvert R F, Glicksman M E, Fang Q T. Metall Trans, 1984: 15A: 2117

- [10] McFadden G B, Rehm R G, Coriell S R, Chnck W, Morrish K A. Metall Trans, 1984; 15A: 2125
- [11] Davis S H, Shulze T P. Metall Mater Trans, 1996; 27A: 583
- [12] Coriell S R, Cordes M R, Boettinger W J, Sekerka R F. J Cryst Growth. 1980; 49: 13
- [13] Turner J S. Buoyancy Effects in Fluids. London: Cambridge University Press, 1973: Chap.8
- [14] Coriell S R, Cordes M R, Boettinger W J, Sekerk R F Adv Space Res, 1981; 1: 5
- [15] Coriell S R, Sekerka R F. Phys Chem Hydrodyn, 1981: 2: 281
- [16] Hurle D T J, Jakeman E, Wheller A A. Phys Fluids. 1983;
  26: 624
- [17] Hurle D T J, Jakeman E, Wheeler A A. J Cryst Growth. 1982; 58: 163