

金属凝固:基于同步辐射原位成像技术的应用研究

杜泽龙¹ 郭恩宇^{1,2} 王同敏^{1,2}

(1.大连理工大学材料科学与工程学院,辽宁省凝固控制与数字化制备技术重点实验室;

2.大连理工大学宁波研究院)

摘要 全面深入研究金属凝固过程中组织和缺陷的演变规律是优化材料成分与制备工艺,提高材料综合性能的关键。作为一种通用型、高精尖、无损定量研究方法,同步辐射 X 射线因其具有高通量、高时空分辨率等特点,在金属凝固过程的研究中得到了广泛应用。综述了国内外基于同步辐射成像技术开展金属凝固过程的研究进展,涉及金属凝固原位研究用装置建设与技术开发,以及针对各类金属材料如铝合金、镁合金、高温合金等的凝固研究进展,重点关注凝固过程的组织演变、外加物理场(如电场、磁场、超声场)作用下的金属凝固行为,并阐述了同步辐射原位成像技术在凝固过程数值模型研究中起到的重要作用。最后,对未来的研究方向进行了展望。

关键词 金属凝固;同步辐射成像;原位表征;组织演变

中图分类号 TG115.22

文献标志码 A

DOI:10.15980/j.tzzz.2023.010.003

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Metal Solidification: Application of Synchrotron Radiation In-situ Imaging Technique

Du Zelong¹, Guo Enyu^{1,2}, Wang Tongmin^{1,2}

(1.Key Laboratory of Solidification Control and Digital Preparation Technology of Liaoning Province,

School of Materials Science and Engineering, Dalian University of Technology;

2.Ningbo Research Institute of Dalian University of Technology)

Abstract: A comprehensive and in-depth study of the evolution of microstructure and defects during metal solidification is the key to optimizing composition and preparation processes, thus improving the comprehensive performance of materials. As a general, high-precision nondestructive and quantitative research method, synchrotron radiation X-ray has been widely used in the field of metal solidification process due to high flux, high temporal and spatial resolution and other characteristics. The research progress in metal solidification process based on synchrotron radiation imaging technique was reviewed, including the construction of devices and technology development for *in-situ* research of metal solidification, as well as the solidification progress of various types of metallic materials such as aluminum alloy, magnesium alloy, superalloy, etc. The microstructure evolution of solidification process and metal solidification behavior under the action of external physical fields (such as electric field, magnetic field, ultrasonic field) was emphasized, and the important role of synchrotron radiation *in-situ* imaging technique in numerical modeling of solidification process was expounded. Finally, future research directions were prospected.

Key Words: Metal Solidification, Synchrotron Radiation Imaging, In-situ Characterization, Microstructure Evolution

金属材料一般具有强度高、延展性好、导电和传热性能好等特点,广泛应用于航空航天、交通运输、电子信息及生物医疗等领域。凝固是大多数金属材料成形制备的重要环节,其中,铸造、焊接和增材制造等各种金属

加工过程均涉及到金属的熔化及凝固过程。凝固组织是连接金属成分和性能的关键桥梁。因此,通过探究金属凝固过程中晶体的形核及生长演变、溶质分布、界面推移、金属间化合物的生成与演变,以及缺陷(如缩松、

收稿日期:2023-08-20

基金项目:国家自然科学基金资助项目(52022017,51974058,52371005,51927801)

第一作者简介:杜泽龙,男,1996 年出生,博士研究生,辽宁大连(116024),E-mail:dzlong126@163.com

通信作者:郭恩宇,男,1985 年出生,教授,辽宁大连(116024),E-mail:eyguo@dlut.edu.cn

引用格式:杜泽龙,郭恩宇,王同敏. 金属凝固:基于同步辐射原位成像技术的应用研究[J]. 特种铸造及有色合金,2023,43(10):1 319-1 335.

DU Z L, GUO E Y, WANG T M. Metal solidification: Application of synchrotron radiation in-situ imaging technique[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2023, 43(10):1 319-1 335.

缩孔、夹杂、溶质偏析等)的形成与演化,对材料组织结构的精确设计和调控、建立成分-凝固组织结构-综合性能的模型、优化材料的综合性能具有重要意义。

金属凝固组织具有不透明性,且凝固过程大多发生在高温环境中,因此实时观察金属凝固过程微观结构的变化极具挑战性。虽然通过传统的金相显微镜、扫描电镜及透射电镜等工具可观察特定条件下快速淬火保留下的显微组织,通过推敲准原位的组织变化过程来获得金属凝固组织演变规律,但过程繁琐、耗时,且难以准确获取任意时刻的金属凝固组织状态。电镜仅能获取试样(近)表面的信息,而材料中微观结构大多呈现复杂三维形态。此外,淬火本身带来的影响也无法消除。

随着科技进步以及 X 射线成像技术的出现,尤其是第三代同步辐射 X 射线成像及断层扫描技术的形成和发展,为金属凝固过程的三维及四维观察提供了重要的技术支撑^[1-2]。将各类凝固装置、多场发生装置及各类金属成形(增材制造、焊接等)等用户自主开发的原位设备与同步辐射 X 射线成像技术相结合,可在微米级分辨率的基础上,获得毫米乃至厘米级宏观试样凝固过程微观结构演变的高通量数据,从而为金属材料的凝固制备过程中各类复杂组织演化机理的揭示,以及各类复杂凝固物理模型和数值算法的开发与完善提供了重要的数据支撑。

本研究综述了近些年国内外研究者基于同步辐射成像技术开展金属材料凝固过程的研究工作,重点针对金属凝固过程的组织演变规律进行了阐述,最终对同步辐射原位成像技术在金属凝固过程中的发展方向进行了展望,旨在为后续研究工作提供参考。

1 基于同步辐射成像技术的凝固组织演变

1.1 晶体的形核及生长

金属的凝固过程大多处于远离平衡条件下,当凝固参数改变时,晶体的形核及生长也呈现不同的状态。其中,枝晶是最为常见的晶体形态,晶体以树枝状分布,大多呈现海藻状、柱状及等轴状等。枝晶的形态和取向不但与材料的性能密切相关,其形成和生长过程还具有较高的理论研究价值。对于该过程的影响因素主要分为两方面,一方面为外因,对于大多数金属材料,凝固过程中组织形成对温度梯度、冷却速度、变质剂及合金元素等方面的变化较为敏感;另一方面为内因,对于各向异性材料,材料自身的晶体结构和择优取向也会影响其最终晶体形态。但是由于晶体的形核和长大处于动态变化过程,且大多呈现复杂的三维形貌,常规的试验方法无法表征凝固过程发生的晶体生长过程,同步辐射 X 射线技术为晶体的形核和生长过程的原位表征提供了有效技术方法。

温度梯度是枝晶形核及生长的重要影响因素之一,合金凝固过程中自然对流的存在显著影响液相传热传质过程,进而影响晶体的形核和生长行为。TANG Y 等^[3]针对不同合金利用同步辐射 X 射线二维成像技术研究了不同温度梯度下的定向凝固行为。图 1 为 Al-Cu 合金及镍基高温合金中不同温度梯度下枝晶的演变。通过图 1a 的试验装置对枝晶进行了定量分析,发现晶粒在间歇性形核后呈现周期性的枝晶生长,这与凝固前溶质浓度的振荡有关。为进一步澄清凝固过程中

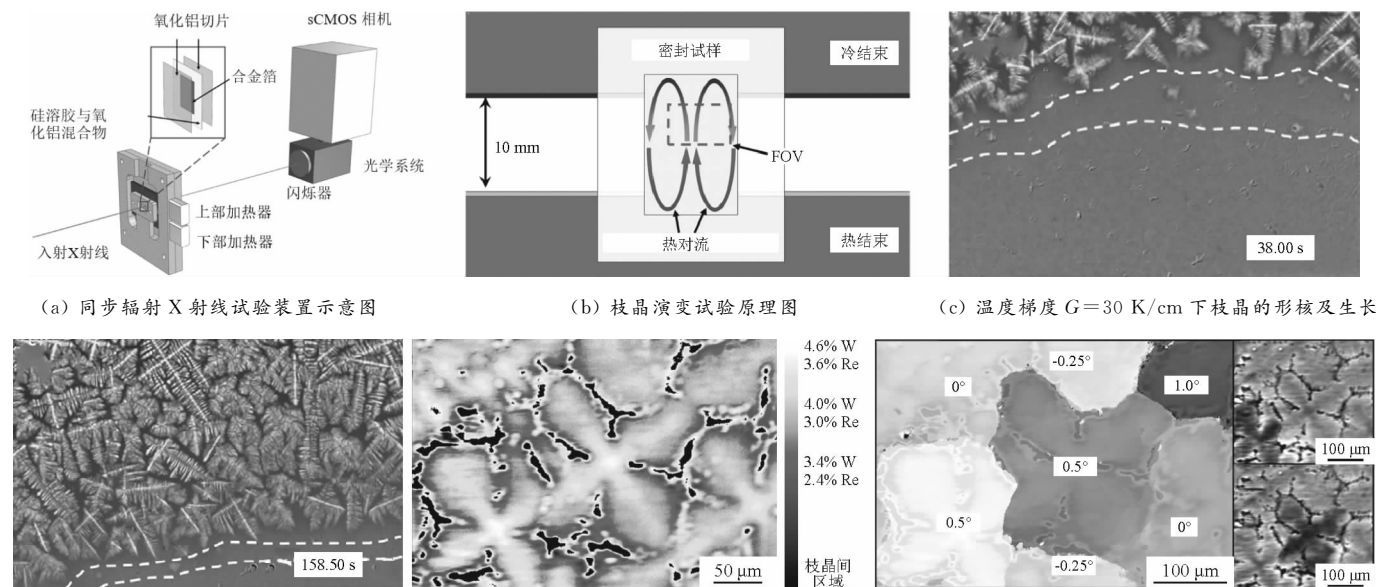


图 1 Al-Cu 合金及镍基高温合金中不同温度梯度下枝晶的演变^[3-5]

Fig.1 Dendritic evolution in Al-Cu alloys and Ni-based superalloys under different temperature gradients^[3-5]

枝晶从形核到长大三维结构的变化。CAI B 等^[4]通过同步辐射 X 射线 4D 层析成像技术,分析了温度梯度阶段从胞状到柱状枝晶形态的转变以及后续柱状枝晶的生长过程,发现了影响凝固组织的相关机制,如枝晶破碎和断裂等,研究结果为金属材料的定向凝固模型的验证提供了新的试验数据。同时,在单晶镍基高温合金枝晶演变的研究中也得到了类似的结果^[5],见图 1e 和图 1f。

通过控制金属凝固过程中的冷却速率可直接影响材料的组织状态。在较高的冷速下,热扩散作用促进了枝晶的生长,通常形成一次和二次枝晶结构;而在较低冷速下,枝晶的形态由溶质扩散决定,但枝晶结构的形成与演化机理仍不清晰。因此,国内外研究者基于同步辐射 X 射线技术,开展了不同冷速条件下枝晶三维结构演化的定量研究。AZEEM M A 等^[6]利用同步辐射

X 射线技术,针对镍基、铁基和钴基合金,在 0.05 ℃/s 的较慢冷速条件下针对三维枝晶形态演变开展了相关研究,见图 2。对于 Mg-Sn 合金,研究发现在 3 ℃/min 的较慢冷却速率下,晶粒只在试样壁附近形核,而在 12 ℃/min 的较高冷却速率下,晶粒的形核是表面/中心混合形核^[7]。CASARI D 等^[8]和WANG Y B 等^[9]也分别针对 Mg-Nd-Gd-Zn-Zr 合金和 Mg-6Gd(质量分数,下同)合金原位观察并量化了不同冷速条件下枝晶的形成及优先生长方向,发现在高冷却速率(>1 ℃/s)下,枝晶以等轴状为主,当冷却速率在 0.5~1 ℃/s 范围内时,枝晶发生等轴状向柱状转变,当冷却速率低于 0.3 ℃/s 时,柱状枝晶生长方向从晶轴向热梯度方向逐渐旋转。上述成果为研究金属凝固过程中晶体三维结构演变动力学提供了支撑。

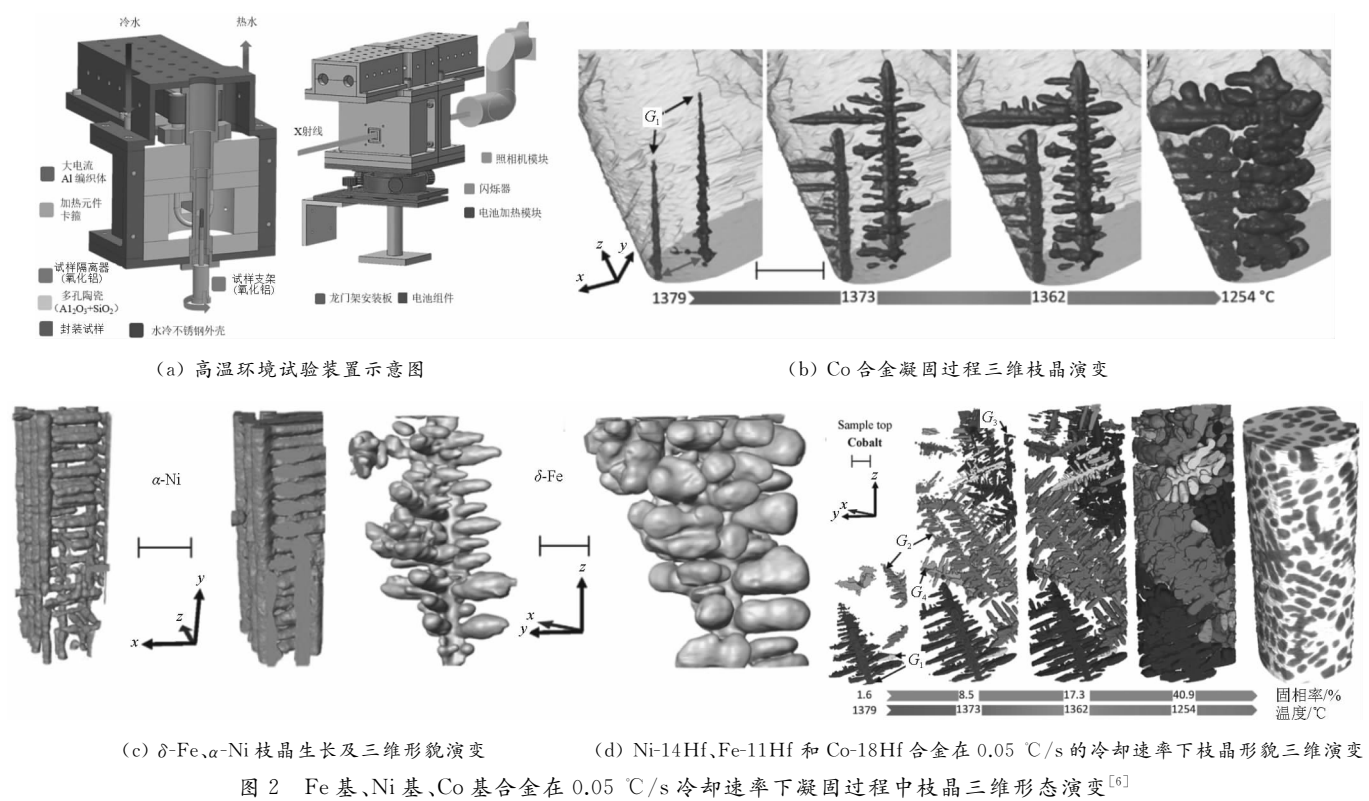


Fig.2 3D morphology evolution of Fe-based, Ni-based and Co-based alloys during solidification at cooling rate of 0.05 ℃/s^[6]

在液态金属结晶前,加入变质剂可使金属液中形成大量分散的非自发晶核,从而获得细小晶粒。基于同步辐射 X 射线成像技术可对微观组织的形核长大进行原位实时观察,进而揭示变质剂对组织的影响。CHAT-CHARIT K 等^[10]通过 Spring-8 同步辐射试验装置,结合其自主研发的凝固环境,原位观察了添加 Mg 后球墨铸铁的微观组织演变。图 3 为球墨铸铁中石墨球的三维形态演变及镁合金晶粒生长。研究发现,在短时间内观察到石墨球形核后漂浮并被奥氏体枝晶吞噬,石墨球的形核和吞噬顺序导致了其二次成核,并决定了凝固组织中石墨球的数量和大小,见图 3a。同时,添加 Mg 还

改善了石墨球的数量、密度和分布,见图 3b。国外有研究^[11-14]不仅利用同步辐射 X 射线 4D 成像技术对球墨铸铁中石墨球的形态及形核、生长速率进行了量化研究,还基于原位观察结果建立了预测石墨球生长模型和包含碳扩散-力学耦合有限元模型,证实了通过奥氏体壳的液化开裂和随后的局部生长形成突起的试验假设,见图 3c 和图 3d。

通过变质剂可调控金属材料的显微组织,异质颗粒的加入亦可对晶粒细化起到重要的作用。GUO E Y 等^[15]利用同步辐射原位 4D 成像技术,研究了 SiC 纳米颗粒对 Mg-25Zn-7Al 合金中 α -Mg 晶粒形核及演化的

影响,重点考察了异质颗粒 SiC 对枝晶晶粒形态及尺寸分布等方面的影响,见图 3e~图 3g。研究表明,纳米颗粒 SiC 促进了 Mg-25Zn-7Al 合金的晶粒形核,随着纳米颗粒的加入,晶粒数量不断增多,平均晶粒尺寸逐渐减小。同时,SiC 纳米颗粒的添加改变了枝晶的生长形

态,使其从树枝状转变为类藻状结构超分支状,具有更多的侧枝分裂尖端,这是由于 SiC 降低了溶质扩散系数,限制了溶质元素的再分配,增加了枝晶尖端的合金元素浓度(特别是 Zn),最终导致了高度分叉的类藻状超分支的晶粒形态。

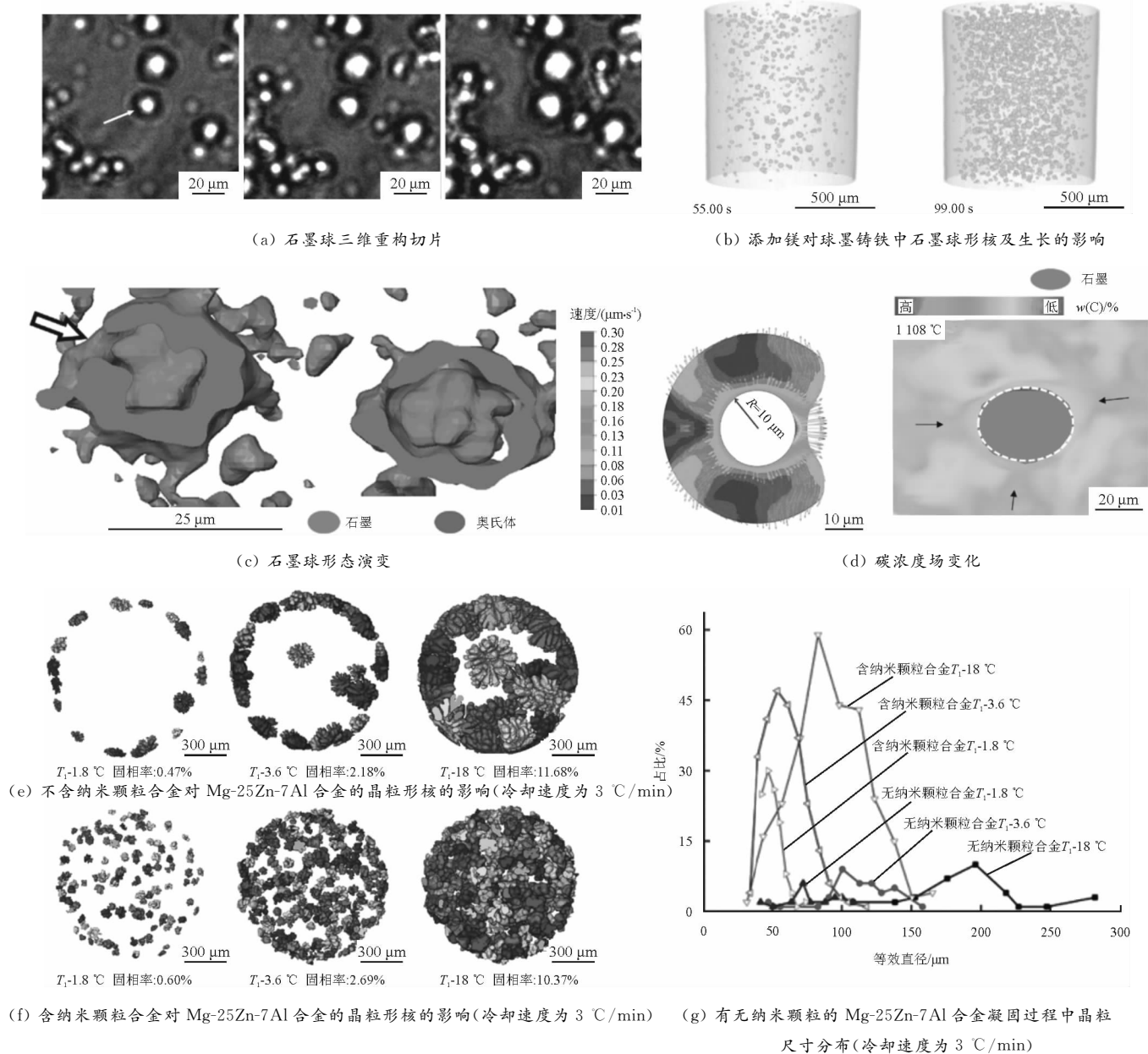


图 3 球墨铸铁中石墨球三维形态演变及镁合金晶粒生长^[10-11, 15]

Fig.3 3D morphology evolution in nodular cast iron and grain growth of magnesium alloy^[10-11, 15]

在凝固过程中,枝晶的生长方向和形态的各向异性通常取决于溶质元素和基体组分,对以 Mg 为代表的密排六方结构而言,最终力学性能通常在不同的晶体方向上表现出差异^[16]。因此,阐明溶质元素的种类及含量对枝晶微观结构的影响和潜在机制十分关键。WANG M Y 等^[17-20]最先基于相场法及同步辐射 X 射线 CT 成像技术,证明了在凝固过程中密排六方 α -Mg 枝晶呈现不同形态,为预测合金凝固过程中枝晶结构演

变提供了新的思路。在此基础上,YANG M 等^[21]、DU J L 等^[22]针对镁合金中不同元素种类对枝晶的影响开展了进一步研究。图 4 为不同元素种类及含量对枝晶的影响。可以看出,随着 Zn 含量增加,MgZn 合金的枝晶形态由 18 个枝晶分支结构转变为 12 个分支结构,即发生枝晶取向转变行为(Dendrite Orientation Transition, DOT)。同时,利用三维相场方法,通过优化基于球面谐波的各向异性函数中相关参数,成功模拟了镁

合金枝晶的 DOT 行为,见图 4e。对于相同元素不同含量的影响,YASUDA H 等^[23]对 Al-*x*Cu 合金(*x* = 5、

10、15,%)凝固过程进行了原位观察。结果表明,Cu 含量为15%和10%的枝晶臂经常出现形核和破碎现象,

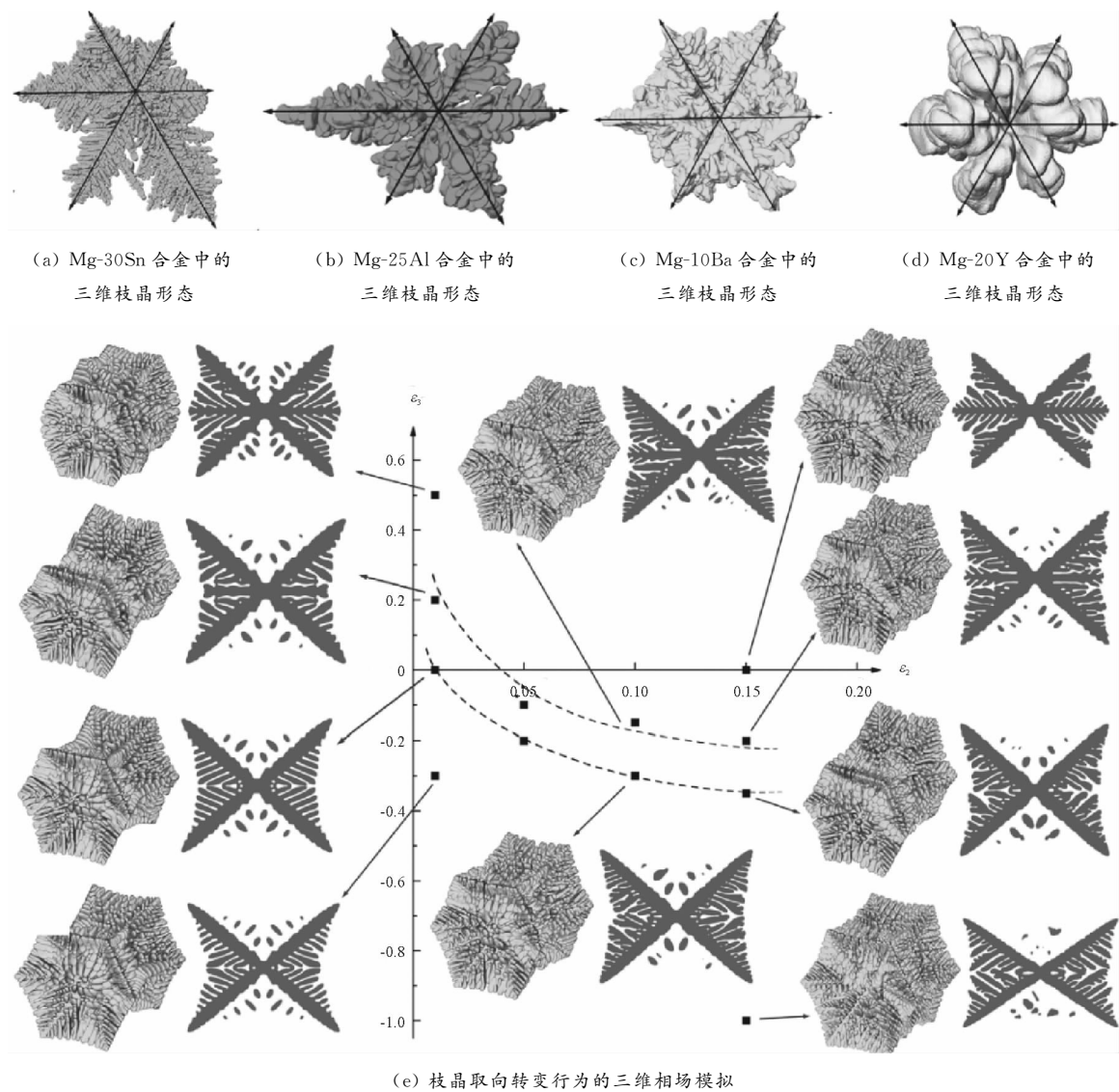


图 4 不同元素种类及含量对枝晶的影响^[21-22]
Fig.4 Effect of different element types and contents on dendrite^[21-22]

而 Cu 含量为 5%的合金中则很少出现。

1.2 晶体的粗化

针对大多数存在一定凝固区间的金属材料,在凝固过程中往往会形成固/液共存的糊状晶区,在该区域中枝晶组织发生粗化不可避免。枝晶粗化对材料的力学性能产生重要影响,如 Al-Si 合金的抗拉强度随着二次枝晶臂间距的减小而增加^[24]。同时,该现象不仅涉及到热力学、统计学、动力学及几何学等多学科交叉,还对凝固理论研究和工程应用至关重要。因此,国内外研究者通过理论分析、数值模拟和试验验证开展了大量研究,探究连续冷却及等温凝固时的枝晶粗化规律。

枝晶粗化通常是由界面自由能所驱动而发生的过程,温度的变化是较为敏感的因素。TERZI S 等^[25]采用同步辐射 X 射线原位 CT 技术,研究了 Al-10Cu 合金

在 570 ℃等温条件下枝晶的粗化过程,见图 5,并揭示了合金枝晶臂粗化的 3 种机制,分别为小枝晶臂的熔合与合并、枝晶间凹部向尖端移动以及枝晶尖端液滴的聚结。FIFE J L 等^[26]通过同步辐射 X 射线成像技术对 Al-Cu 合金枝晶组织的等温粗化动力学进行了研究,见图 6,并从试验方面对 MARSH S P 等^[27]提出的枝晶臂的几何形状会对其他枝晶臂的凝固或熔化动力学产生影响的观点进行了验证。GUO E Y 等^[28-29]原位观察了 Mg-Zn 合金等温过程中小枝晶臂熔化及相邻枝晶臂合并的两种粗化机制,见图 7。三维量化数据研究表明,冷速对于 Mg-25Zn 合金的等温粗化速率影响较小,但对于 Mg-38Zn 合金却有较大影响。在重力引起的自然对流是否对枝晶臂的熔断研究方面,COOL T 等^[30]在国际空间站微重力条件下针对 Mg-Zn 合金开展了糊

状区的等温试验,见图 8,发现在没有对流的等温条件下,枝晶臂的熔断现象依旧存在。

除了等温条件下枝晶的粗化外,在凝固过程中也存在着枝晶粗化的现象,LIMODINN等^[31]通过同步辐

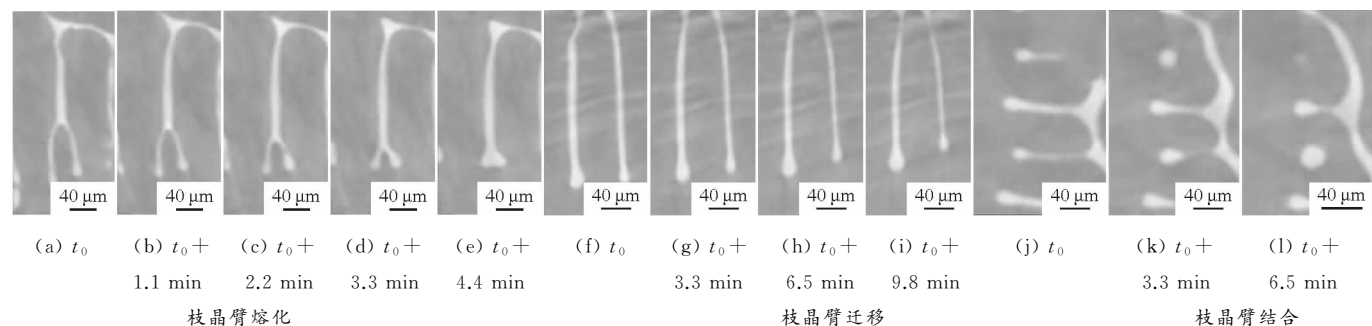


图 5 Al-Cu 合金枝晶臂等温粗化^[25]

Fig.5 Isothermal coarsening of Al-Cu dendrite arm^[25]

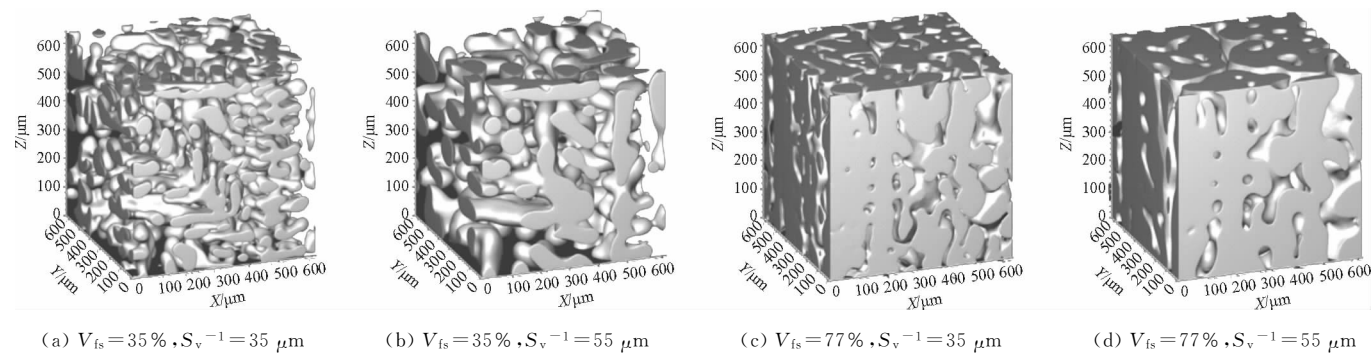


图 6 Al-Cu 合金等温粗化过程中固相占比(V_{is} 为固相体积分数, S_v^{-1} 为单位体积反表面积)^[26]

Fig.6 Solid fraction of Al-Cu alloy during isothermal coarsening^[26]

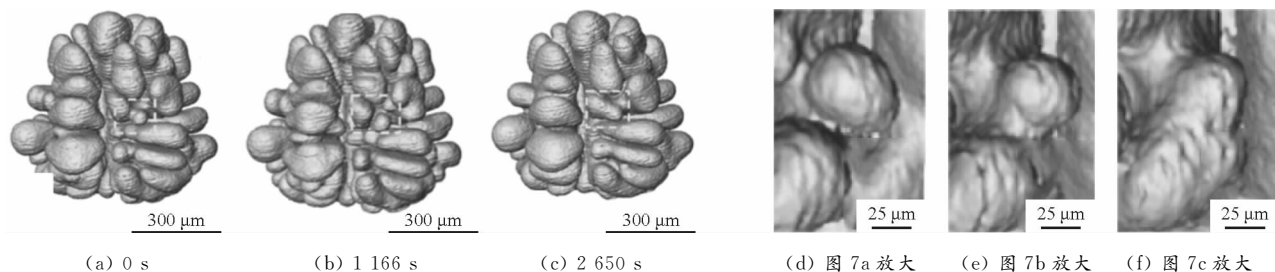


图 7 Mg-Zn 合金在 490 °C 等温粗化过程中 α -Mg 的枝晶演化^[28]

Fig.7 Dendrite evolution of α -Mg in Mg-Zn alloy during isothermal coarsening at 490 °C^[28]

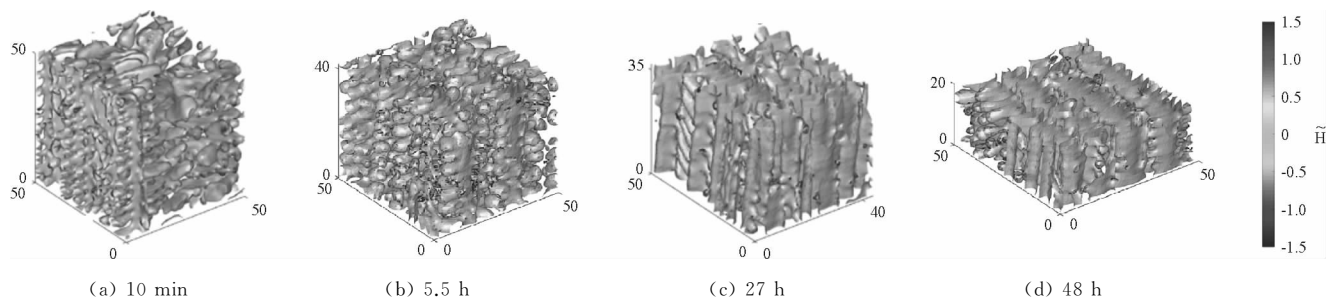


图 8 Pb-Sn 合金粗化不同时间后晶体结构^[29]

Fig.8 Crystal structure of Pb-Sn alloy after coarsening for different time^[29]

射 X 射线断层扫描成像技术研究了 Al-10Cu 合金冷却凝固过程中枝晶的粗化,见图 9。该合金凝固后形成粗大的枝晶组织,并随着温度变化,固液界面比表面积和固相局部曲率均不断变化。SUN Y 等^[32]采用同步辐

射 X 射线技术对不同保温时刻的 Al-Cu 合金中枝晶的比表面积进行了分析。定量研究表明,比表面积归一化后的主曲率分布基本相同,表现出自相似的特征,见图 10。其中,正值表示固相内的体素,负值表示液相内的体素。

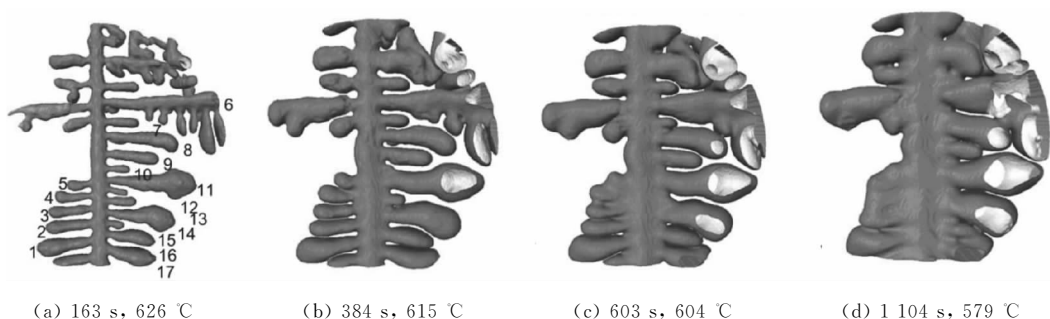


图 9 Al-10Cu 合金冷却凝固过程中枝晶的粗化^[31]

Fig.9 Dendrite coarsening of Al-10Cu alloy during cooling and solidification^[31]

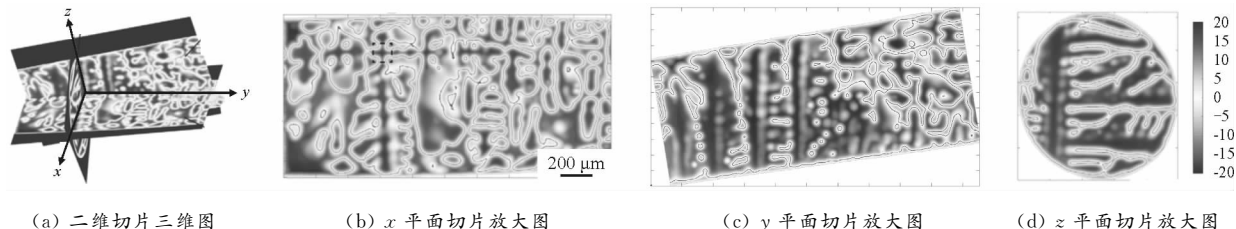


图 10 基于数据切片分析的 Al-Cu 合金冷却过程枝晶的粗化^[32]

Fig.10 Dendrite coarsening of Al-Cu alloy during cooling based on slice analysis^[32]

在试验表征的基础上,研究者通过物理模型及理论的数值模拟技术,研究了枝晶粗化及重熔时枝晶臂的熔断机制。ZHANG Q Y 等^[33]、ZHU M F 等^[34]采用包含熔化/凝固机制的元胞自动机模型模拟了 SCN-2ACE 合金在糊状区等温过程枝晶的粗化。图 11 为通过浓度场展示的模拟结果。可以看出,保温时间越长,枝晶的粗化效果越明显。NEUMANN-HEYME H 等^[35]和 WESNE R 等^[36]通过相场法对枝晶熔断过程进行了模拟,并与同步辐射 X 射线成像的观察结果进行对比,验证了模拟的准确性。相比试验表征,数值模拟可更加全面地讨论动力学、热力学、温度场及流场等综合因素的影响,同时试验结果也为物理模型的建立提供了参数支撑及结果验证。因此,同步辐射原位成像揭示的晶体、缺陷演变行为和组织的模拟研究可为开展铸

造过程的组织形成与演化研究提供新视角。

1.3 金属间化合物的演变

不同合金熔体在凝固过程中会析出多种金属间化合物,如 Al_6Mn 、 Sn_4Ni 、 Al_3Ni 、 Al_2Cu 、 Cu_6Sn_5 、 Mg_2Si 等,金属间化合物的形貌与凝固条件有关,是影响合金力学性能的重要因素^[37-39]。在材料加工和使用过程中,金属间化合物处易产生应力集中,进而影响合金的强韧性。因此,了解和控制在凝固过程中成核和生长特征具有重要意义。然而,通过淬火和深腐蚀等传统方法进行的非原位试验不能完全揭示金属间化合物的演变机理,特别是针对熔体中相互重叠的金属间化合物更加困难。近年来,研究者开始基于同步辐射 X 射线成像技术原位研究金属间化合物的生长行为。

在高温状态下,不同金属之间冶金结合常常伴随着金属间化合物的形成,因而揭示界面处金属间化合物的形成及生长机理是控制合金组织的关键因素。通过原位同步辐射 X 射线成像技术,可全面、清晰地观察到界面反应的全过程。SALLEH M A A M 等^[40]基于同步辐射 X 射线成像技术原位观察了固态 Cu/液态 Sn 之间的界面反应。图 12 为润湿反应过程中 Sn-0.7Cu/Cu 界面间金属化合物的形成。可以看出,当温度达到 244 °C 时,液态 Sn 开始发生润湿反应,Cu 在固-液界面附近溶解至焊料中,并促进了大量 $\eta\text{-Cu}_6\text{Sn}_5$ 金属间化合物的析出,最终以层状形式分布。ZHAO N 等^[41]、MA H T 等^[42]基于同步辐射 X 射线技术分析了 Sn/Cu、Sn-Ag/Cu 焊接界面金属间化合物的生长及合并行为。结果表明,金属间化合物的合并行为在焊接前期速

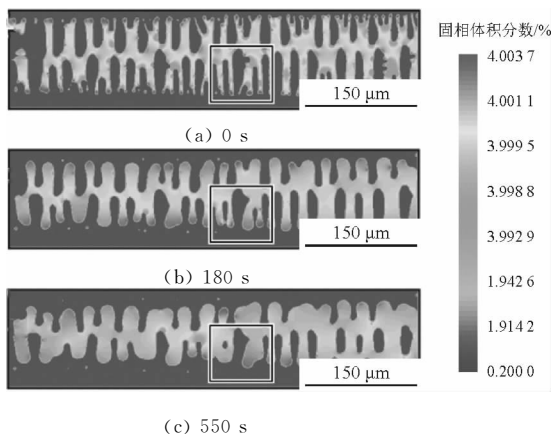


图 11 SCN-2.0ACE 合金枝晶粗化过程的数值模拟^[33]

Fig.11 Numerical simulation on dendrite coarsening of SCN-2.0% ACF alloy^[33]

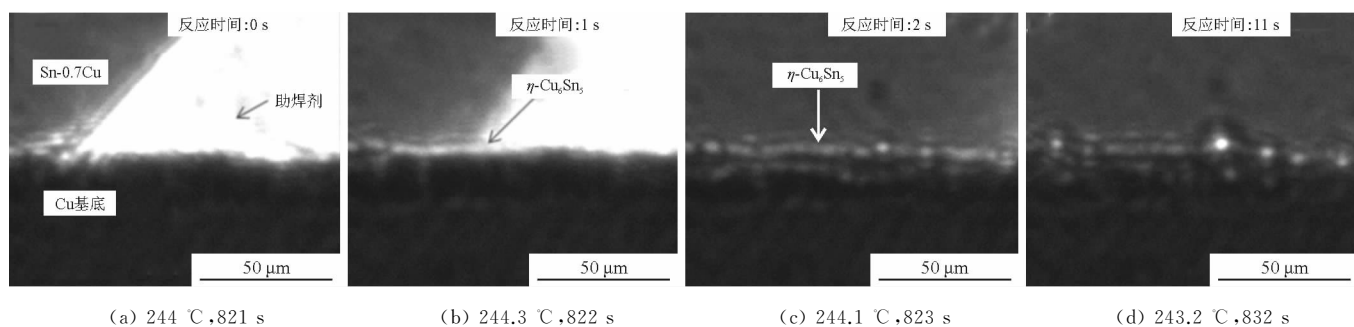
图 12 润湿反应过程中 Sn-0.7Cu/Cu 界面间金属间化合物的形成^[40]

Fig.12 Formation of intermetallic compounds between Sn-0.7Cu and Cu interface during wetting reaction^[40]

度较快,随着 Cu_6Sn_5 晶粒的减少,合并速度逐渐降低,这种合并行为的原因是 Gibbs-Thomson 效应导致 Cu 原子易在金属间化合物附近的晶粒发生扩散。

Al/Cu 金属界面间也易形成复杂的金属间化合物, CAO F 等^[43-45] 原位研究了 Al/Cu 界面元素的相互扩散和微观组织的演化, Al 和 Cu 元素在界面处相互扩散, 产生的浓度梯度会导致 Al 侧试样凝固形成的 α -Al 枝晶向界面方向生长, 并最终形成由 α -Al 枝晶、共晶结

构(α -Al+Al₂Cu)、Al₂Cu 和金属间化合物层组成的微观组织。界面周围存在溶质过渡区,分别为 I (α -Al)、II (Al+Al₂Cu)、III (Al₂Cu) 和 IV (AlCu、Al₃Cu₄和 Al₂Cu₃),见图 13a 和图 13b。DING Z Y 等^[46-47]基于同步辐射 X 射线原位观察了 Al₃Ni 在液/固界面的二维形貌和生长行为,图 13c 和图 13d 为熔体层中不同饱和度和 Al₃Ni 相的原位生长。结果表明,Al₃Ni 的形成时间和形成机理与熔融层的饱和程度有关。

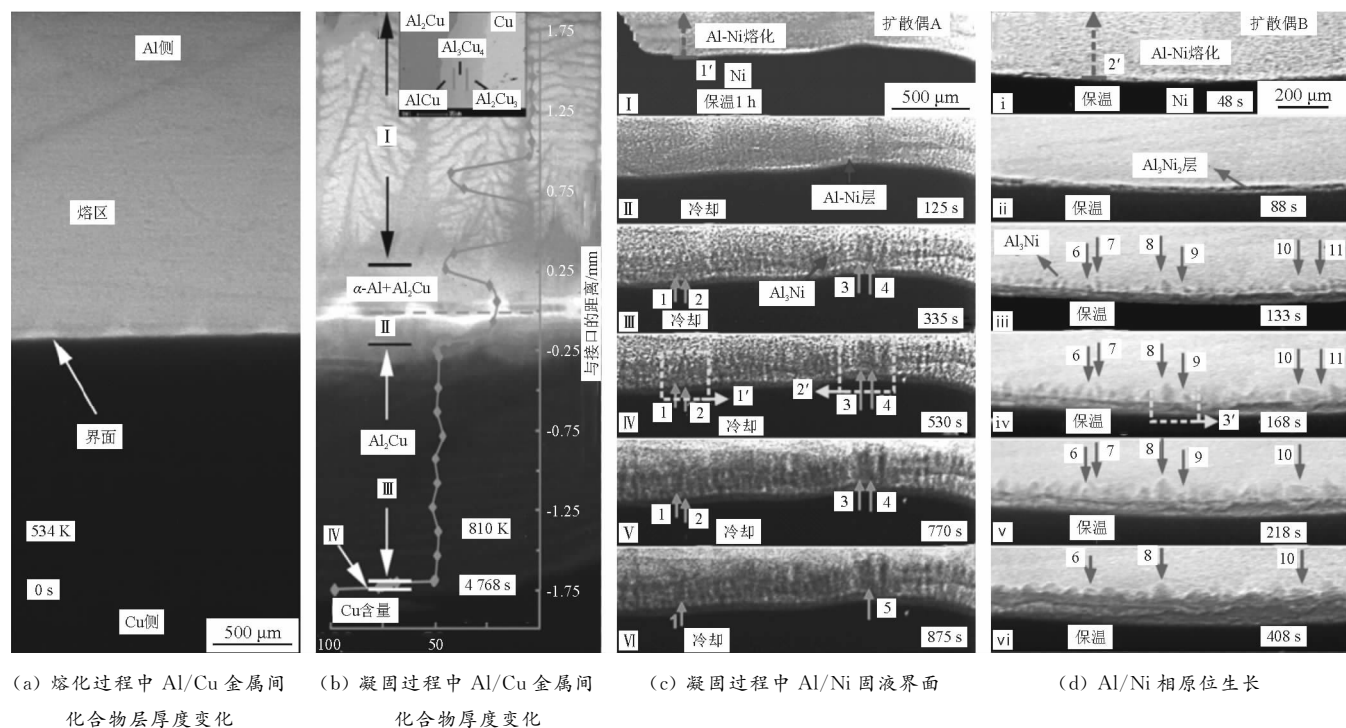
图 13 熔化及凝固过程中液/固界面金属间化合物的生长^[43, 46]

Fig.13 Growth of intermetallic compounds at liquid/solid interface during meting and solidification^[43, 46]

金属间化合物在生长过程中易形成不同的三维形貌,通过同步辐射三维 CT 技术可研究其形态演变。LU W Q 等^[48-49]针对 Al-Ni 金属间化合物进行了大量研究。图 14 为利用同步辐射 CT 技术表征了不同条件下 Al-Ni 界面上金属间化合物三维形貌和生长机理,在凝固过程中,界面处先形成层状的金属间化合物 Al_3Ni_2 ,其次是柱状和针状 Al_3Ni ,见图 14a、图 14b^[50]。

同时,还对金属间化合物间的相互作用关系进行了研究,由图 14c~图 14g 分析可知^[51-52],两个重叠棒状的 Al_3Ni 晶体生长过程中相互作用主要分为 3 个阶段,分别为螺旋位错驱动、生长受阻及恢复生长形成沟槽,并在 Al-Mn 合金中发现了类似的规律。ZHAO Y L 等^[53]基于同步辐射 X 射线成像技术对 Al-Fe 合金中相的形成与演变进行了大量研究,通过同步辐射 CT 技术

揭示了不同 Fe 含量(0.1%、0.5% 和 0.8%)的 Al-Mg-Mn-Fe 合金中初生 $\text{Al}_6(\text{FeMn})$ 相的形成机理。SONG Z H等^[54]通过同步辐射 X 射线断层扫描成像技术,研究了 Al-5Fe 合金凝固过程中 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 金属间化合物的形核和生长动力学,并为其形成机理提供了新的见

解。研究表明, $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 晶体生长形状多样,主要包括板状、六边形格状、阶梯状和 V 形等,见图 15。这主要取决于该化合物的晶体结构及其对孪生的敏感性,以上研究工作为深入理解金属间化合物相的形成及转变机制提供了新的视角。

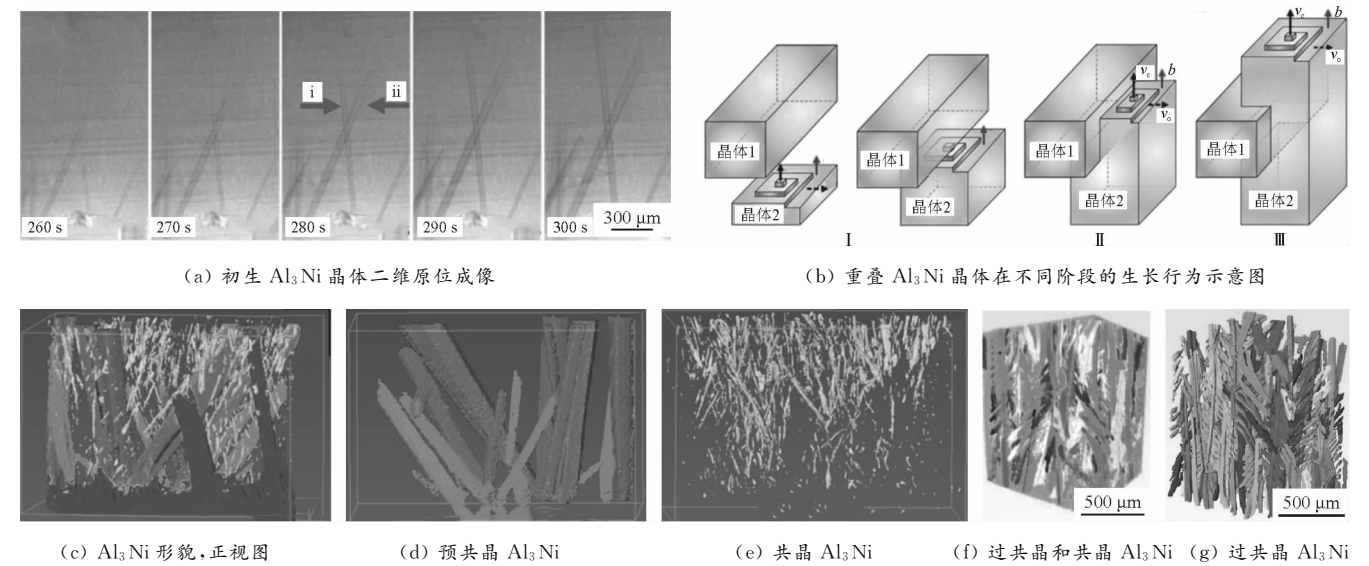


图 14 冷却凝固过程中金属间化合物的三维形貌^[50-52]
Fig.14 3D morphologies of intermetallic compounds during cooling and solidification^[50-52]

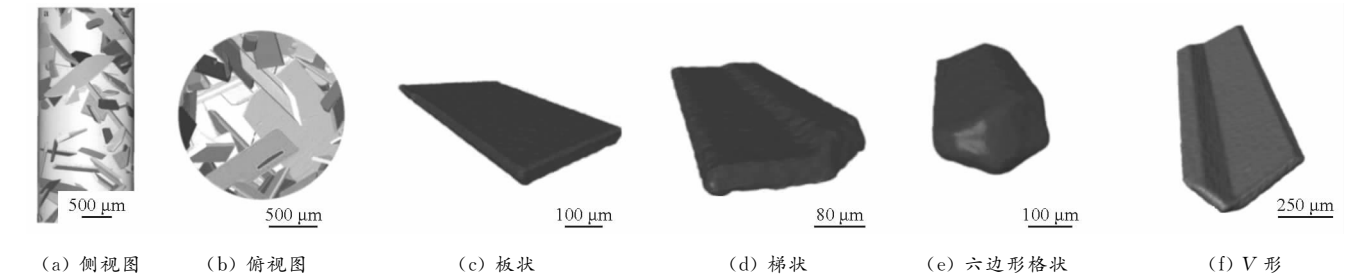


图 15 不同形态 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 金属间化合物^[54]
Fig.15 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ intermetallic compounds with different morphologies^[54]

1.4 缺陷的形成与演化

为了减少或消除在铸造凝固过程中的缺陷,首先要全面了解缺陷的形成过程,才能有针对性地提出应对措施。然而,大多的试验方法通过切取铸锭的部分试样,观察凝固最终状态的缺陷,无法准确反推缺陷的形成过程。通过原位同步辐射 X 射线成像技术可实现凝固过程的原位动态实时观测,为解决铸造过程的缺陷问题提供了新的思路。

化学成分不均匀产生的偏析是铸件中不可避免的缺陷之一,可以分为微观偏析和宏观偏析。在实际铸造条件下,合金的凝固速度较快,原子得不到及时充分的扩散,使得材料内部化学成分不均。BOGNO A 等^[55]采用欧洲同步辐射装置(ESRF)的 ID19 束流线对 Al-4Cu 的定向凝固过程进行了原位观察,发现了固液界面宏观形状在熔体中对流相互作用下不断演变,见图 16。

可见,流体流动引起的横向溶质偏析导致固液界面显著变形。除了定性分析外,LIOTTI E 等^[56]使用同步辐射 X 射线成像技术与机器学习相结合,研究了 Al-Cu 合金凝固过程中合金成分、冷却速率和瞬时局部溶质浓度的变化,见图 17。发现当固体分数为 2% 时,Cu 含量

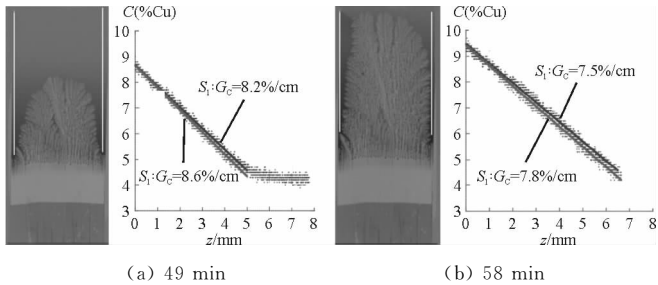


图 16 柱状凝固 49 min 和 58 min 后固液界面的图像及溶质分布^[55]

Fig.16 Solid-liquid interface and solute distribution after solidification for 49 and 58 min^[55]

从 10% 增加到 25%，富溶质液体分数从 33% 增加到 57%；当固体分数为 3% 时，富溶质液体分数从 38% 增加到 69%。同时，溶质分布还对晶粒分布有较大影响，

JIA Y W 等^[57] 基于同步辐射 X 射线成像技术验证了固液界面前溶质浓度分布不均，易使溶液中产生抑制形核区和促进形核区，并对晶粒尺寸产生较大影响。

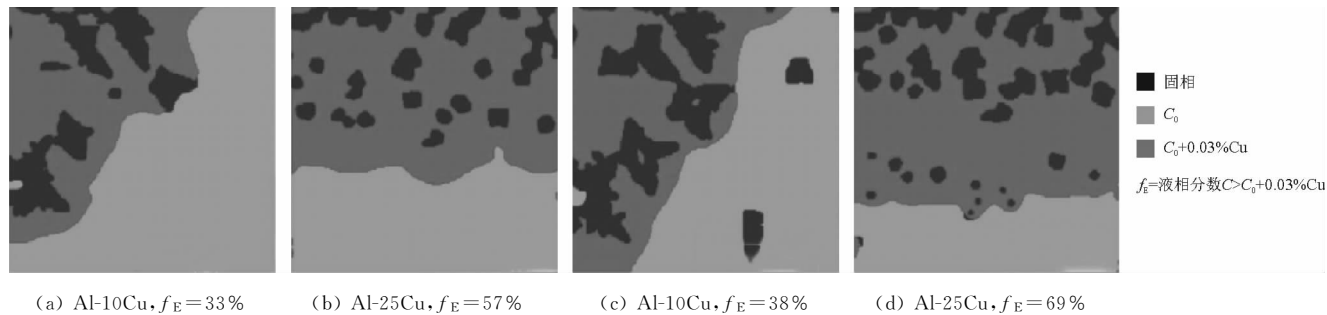


图 17 Al-10Cu 和 Al-25Cu 凝固过程中富铜液体的分数^[56]

Fig.17 Fraction of Cu-rich liquid in Al-10Cu and Al-25Cu alloy during solidification^[56]

金属凝固过程中容易出现缩孔、裂纹等缺陷，由于其无法通过后续加工完全消除，严重时铸锭将直接报废，造成巨大的经济损失。合金（特别是铝合金、钢等）中通常存在缩孔和氢气孔两种类型，缩孔主要是凝固收缩时补液不足造成的，而氢气孔隙主要是凝固时空气夹持和溶解氢气释放造成的。ZHANG T T 等^[58-59] 基于同步辐射 X 射线技术对不同工艺参数（注射速度、凝固压力）下的高压压铸（High Pressure Die Casting, HP-DC）铸件进行了三维重建。图 18 为 AE44 镁合金高压

铸造铸件不同成因孔隙三维分布。孔隙根据形成机理和形态（体积大小和球形）的不同，可分为 4 类，包括气孔（体积小、形状圆）、气缩孔（体积较大、形态复杂）、净缩孔（体积大、形态复杂）和岛缩孔（体积小、形态相对复杂）。PLANCHER E 等^[60] 通过同步辐射 X 射线 4D 成像技术跟踪了镍基高温合金中单个孔隙的形核及生长过程，分析了不同冷却速度对孔隙形成的影响，见图 19。研究表明，枝晶与孔隙的形成密切相关，并在局部固相分数较高的密闭区域易出现缩孔。

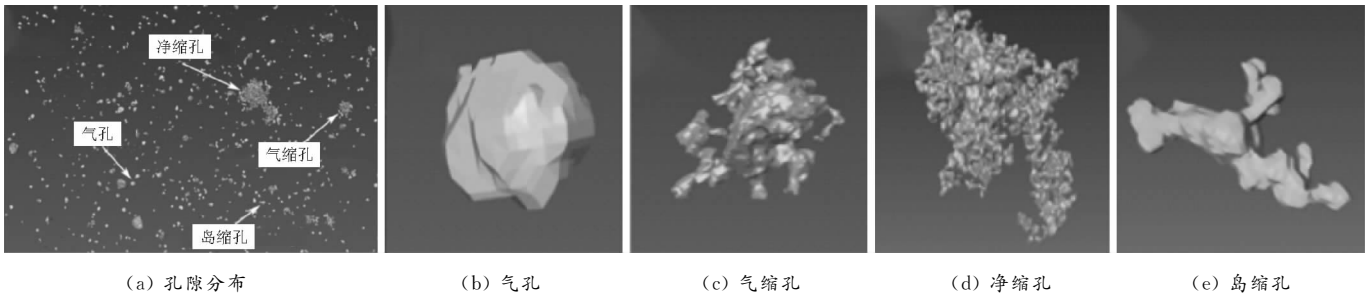


图 18 AE44 镁合金高压铸造铸件不同成因孔隙三维分布^[58]

Fig.18 3D distribution of pores by different origins in HPDC AE44 Mg alloy^[58]

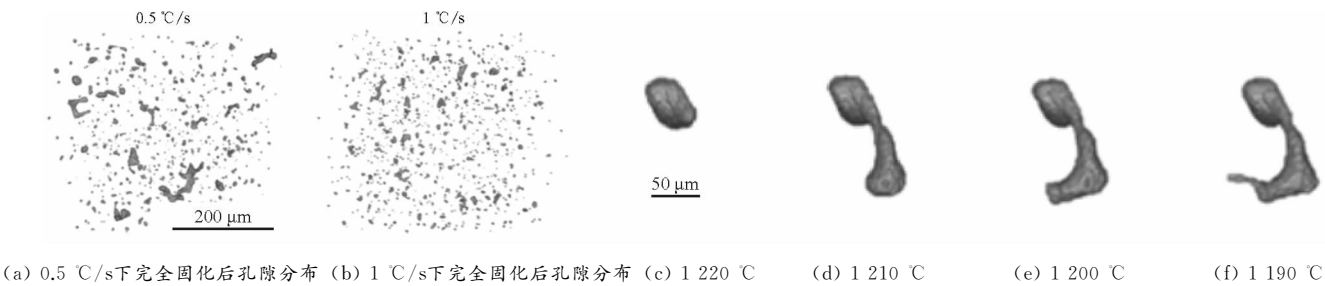


图 19 镍基高温合金凝固过程中孔隙的三维演化^[60]

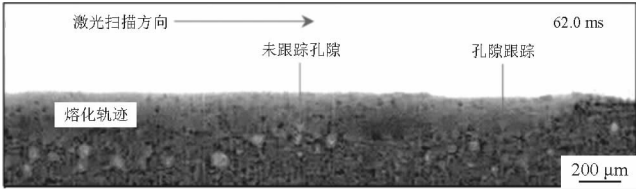
Fig.19 3D evolution of pores in Ni-based superalloy during solidification^[60]

近年来，增材制造技术（AM）逐渐兴起。激光增材制造技术主要是使用聚焦激光束将松散的粉末材料融合在一起，逐层构建具有复杂特征的三维物体。然而，对于增材过程动力学时间分辨率在 $10^{-9} \sim 10^{-3}$ s 之间^[61-62]，常规的试验手段无法观察如此快速的变化过

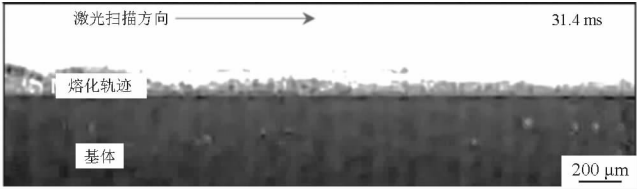
程，瞬态机制（包括熔池动力学和缺陷形成）如何影响最终产品的基本理解缺失，使该过程中缺陷不能得到有效控制，生产零件无法达到理想的力学性能，进而出现过早失效的问题。同步辐射 X 射线因其有高时空分辨率和高通量的特点，可对零件进行快速成像，非常适合于

研究缺陷形成机制、熔池形貌的演变及非平衡凝固行为。

在试验研究方面,LEUNG C L A 等^[63]通过同步辐射 X 射线成像技术与高保真多相模拟相结合,量化了激光粉末床熔合(Laser Powder Bed Fusion,LPBF)过程中孔隙度的变化。图 20 和图 21 分别为 Inconel 625 增材制造过程中孔隙二维分布和三维分布,发现缩孔的形成是由高温和高金属蒸气混合驱动造成的。在



(a) $v=50\text{ mm/s}$, $SE=0.095\text{ M}\cdot\text{MJ}/(\text{m}\cdot\text{s}^{1/2})$



(b) $v=100\text{ mm/s}$, $SE=0.067\text{ M}\cdot\text{MJ}/(\text{m}\cdot\text{s}^{1/2})$

图 20 Inconel 625 增材制造过程中孔隙二维分布^[63]

Fig.20 2D distribution of pore in Inconel 625 during additive marlufacture^[63]

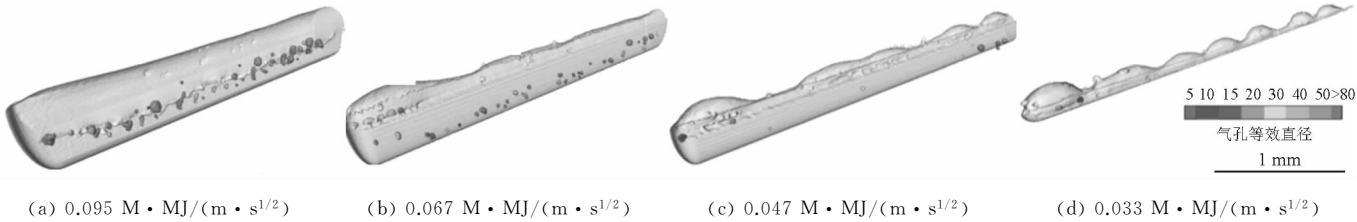


图 21 Inconel 625 增材制造过程中内部具有孔隙的熔体三维分布^[63]

Fig.21 3D distribution of melts with pore in Inconel 625 during additive marlufacture^[63]

确的初始输入和现场试验测量的边界条件,有助于提高模型的可信度,并为模型建立提供重要支撑。同时,数值模拟可以提供试验无法测量的信息(如熔池中的温度分布等),更有助于定量地解释表征的试验结果。热传导、计算流体动力学、相场和多物理模型可用于模拟增材制造过程和预测最终材料的微观结构,并通过表征方法验证模型的准确性。HOJJATZADEH S M H 等^[66]使用多物理场模型模拟了 LPBF 中 Al-10Si-Mg 合金试样熔池内的温度分布,并通过同步辐射 X 射线成像对蒸气凹陷和熔池形态进行了验证,同时提供了无法直接测量的热信息。通过试验和数值模型相结合的方式,确定了一种在 LPBF 过程中消除孔隙率的新机制,即热毛细力驱动的孔隙运动。随着高能同步辐射 X 射线与三维有限元模拟技术的联合应用,以及基于增材制造技术的高通量材料制备技术持续发展,全周期原位观察和定量表征增材制造材料将成为可能。

2 外加物理场作用下熔体的凝固行为

通过外加物理场可以影响金属熔体及微结构的演变,进而调控凝固组织,提高铸件质量。目前国内外利用同步辐射 X 射线成像技术研究了电场、磁场及超声

其另一项研究^[64-65]中,通过同步 X 射线成像技术观察到与缩孔相关的瞬态熔池动力学包括:①缩孔萌生,②缩孔发展,③熔池恢复。其中,气孔率和飞溅与阶段②和阶段③相关。液滴飞溅是由于缩孔反冲区崩溃,导致在阶段(Ⅲ)中熔融颗粒团聚和喷射,并阐明了多层 LB-PF 过程中缩孔形成的瞬态动力学,对减少增材制造中孔隙率和飞溅有重要的参考意义。

在数值模型建立方面,基于同步辐射原位数据更精

场等物理场作用下的金属凝固行为,并揭示了外加物理场对金属凝固的调控机制,研究成果为优化合金组织与综合性能提供了新的途径。

2.1 电场作用下的凝固行为

在电流作用下,熔体内部会发生溶质扩散、热传递及界面能态的改变,从而在很大程度上影响内部晶粒的生长动力学及热力学。本课题组基于上海同步辐射光源(SSRF)研究了 Sn-Pb 合金和 Sn-Bi 合金在直流及脉冲电场作用下凝固过程中枝晶的形态演变^[67-70]。图 22 为同步辐射 X 射线成像试验装置示意图。结果表明,针对 Sn-Pb 合金,在凝固过程中适当施加直流电场

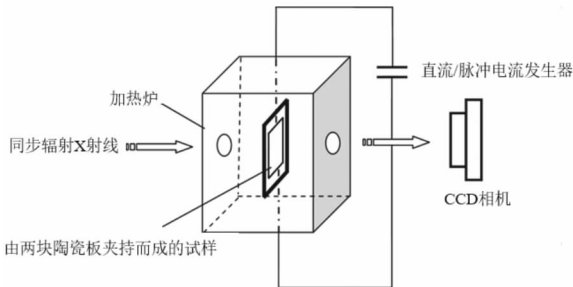


图 22 同步辐射 X 射线凝固试验装置示意图^[67]

Fig.22 Schematic diagram of device for synchrotron radiation X-ray solidification test^[67]

(DC)能有效增强晶粒形核并抑制其生长,最终晶粒尺寸依赖于直流电场强度,见图 23。图 24 为直流电流密度为 32 A/cm^2 时,Sn-Bi 二元合金凝固过程中的枝晶生长。结果显示,高强度直流电场下枝晶出现尖端分裂。随着直流电流密度的增大,枝晶形貌由柱状晶变为等轴胞状晶,再变为等轴晶。在交流脉冲作用下,随着过冷的积累,枝晶突然发生成核、生长,最终形成具有较窄枝晶臂间距的枝晶。并且仅在晶体生长阶段施加交流脉冲的外加场时,枝晶先重熔,而后沿原生长轨迹重新出现,具有较强的遗传特征,见图 25。

此外,XUAN Z J 等^[71]基于同步辐射高分辨率 X 射线实时成像技术,原位观察了直流电场作用下包晶凝

固的组织演化,特别关注了初生相 $\epsilon\text{-Cu}_3\text{Sn}$ 和包晶相 $\eta\text{-Cu}_6\text{Sn}_5$ 的形态演化。研究发现,在 20 A/cm^2 和 200 A/cm^2 的直流电场作用下,Sn-10Cu 合金凝固过程中 η 相直接从母相析出,没有发生相应的包晶反应,说明直流磁场改变了 ϵ 相的相变顺序,抑制了 ϵ 相的成核。在此基础上,同步辐射 X 射线衍射技术(XRD)亦对分析电场对晶体结构的影响起到了重要作用。HE J Y 等^[72]及 WANG T H 等^[73]采用原位同步辐射 X 射线衍射分析了电流应力对 Sn_9Zn 合金晶体结构的影响,Sn 和 Zn 晶体的 XRD 取向峰在电流应力作用下迅速减小,表明晶体结构受到了电场作用下的破坏, Sn_9Zn 合金的应变增加速率和晶体结构的电破坏速率均与电流

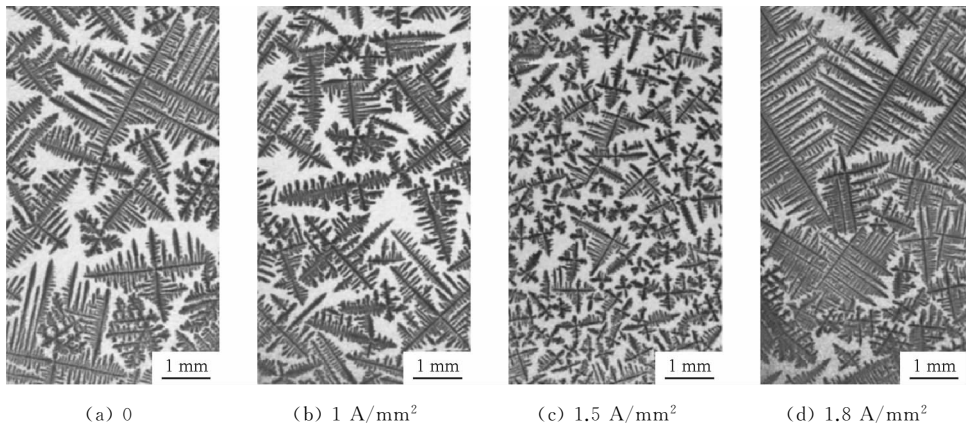


图 23 Sn-Pb 合金在不同直流电场作用下的凝固组织^[68]

Fig.23 Solidification microstructure of Sn-Pb alloy under various DC field^[68]

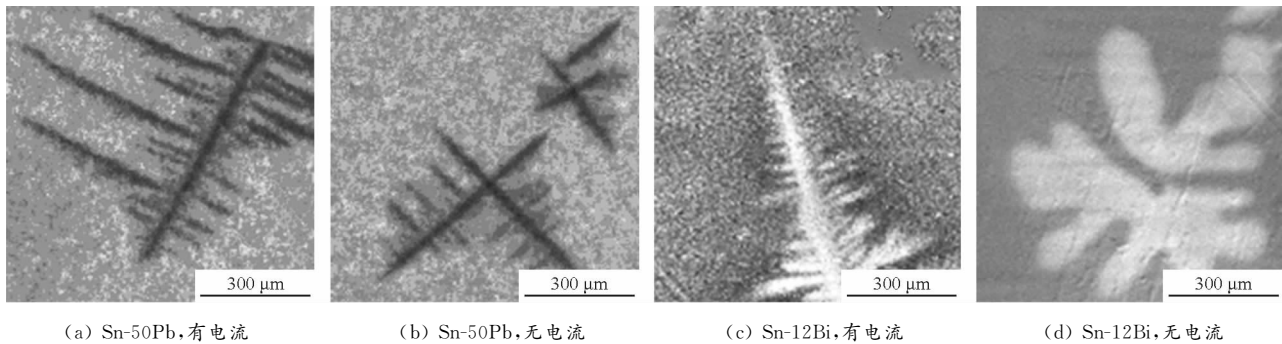


图 24 Sn-50Pb 及 Sn-12Bi 合金有/无直流电场作用下的枝晶形态^[69]

Fig.24 Dendrite morphologies of Sn-50Pb and Sn-12Bi alloy with or without DC field^[69]

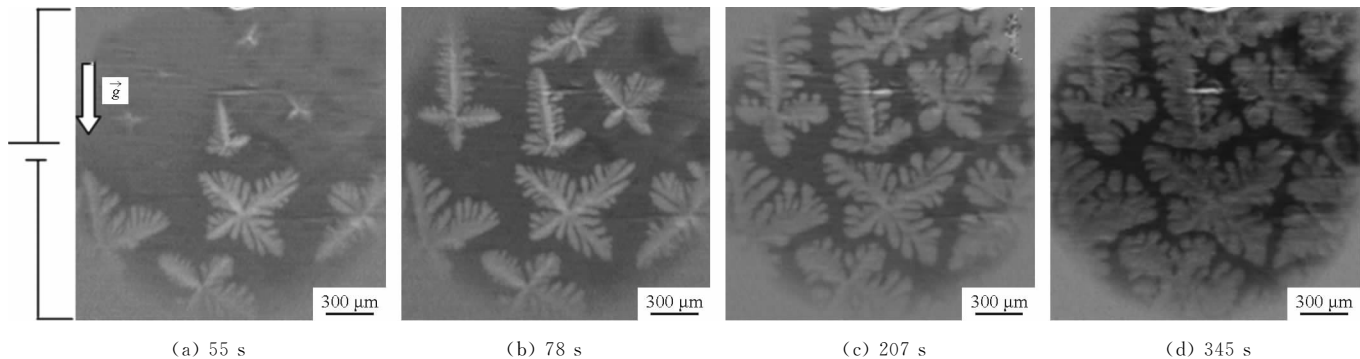


图 25 直流电流处理时间对 Sn-Bi 二元合金凝固过程中枝晶生长的影响^[70]

Fig.25 Effects of DC field on dendrite growth of Sn-Bi binary alloy during solidification^[70]

密度呈指数关系。

2.2 磁场作用下的凝固行为

磁场通常分为强磁场、静磁场、行波磁场和脉冲磁场等,这些磁场对金属的凝固过程产生较大的影响。基于同步辐射 X 射线成像技术,LIOTTI E 等^[74]研究了 Al-Cu 合金在脉冲电磁场作用下不同凝固方向的枝晶破碎行为,图 26 为试验装置的示意图。在静磁场(B)存在的情况下,通过信号发生器脉冲电流(I)穿过试样平面,脉冲洛伦兹力(F_L)作用在试样上。图 27 为凝固过程的图像序列及其碎片图,通过同步辐射 X 射线荧光分析技术直接测量了熔质梯度分布,研究表明,枝晶破碎的空间分布与磁场有较强的相关性,建立了一个可扩展到工业条件下的枝晶破碎度空间分布的综合模型。在行波磁场(TMf)的作用下,CAO F 等^[75]采用同步辐

射 X 射线技术对 Sn-50Pb 合金自底向上凝固过程中溶质分布和枝晶生长行为进行了原位研究,见图 28。由图28可知,行波磁场导致了从左向右的强制熔体流动,

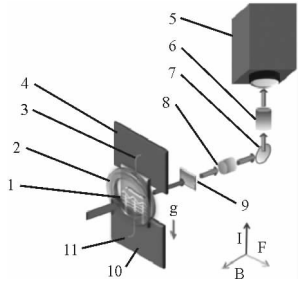


图 26 同步辐射 X 射线凝固装置示意图^[74]
Fig.26 Schematic diagram of device for synchrotron radiation X-ray solidification^[74]
1.试样 2.永磁环 3,11.导线 4.上部加热器 5.CMOS 相机
6.管状透镜 7.镜子 8.物镜 9.闪烁器 10.下部加热器

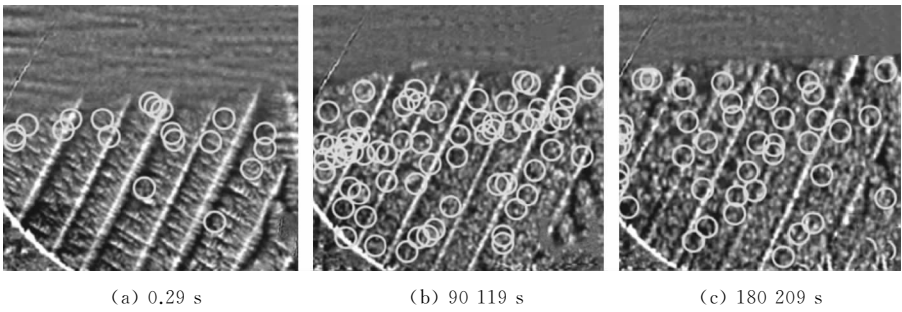


图 27 脉冲电磁场作用下 Al-Cu 合金的枝晶破碎行为^[74]
Fig.27 Dendrite broken behavior of Al-Cu alloy under pulsed electromagnetic field^[74]

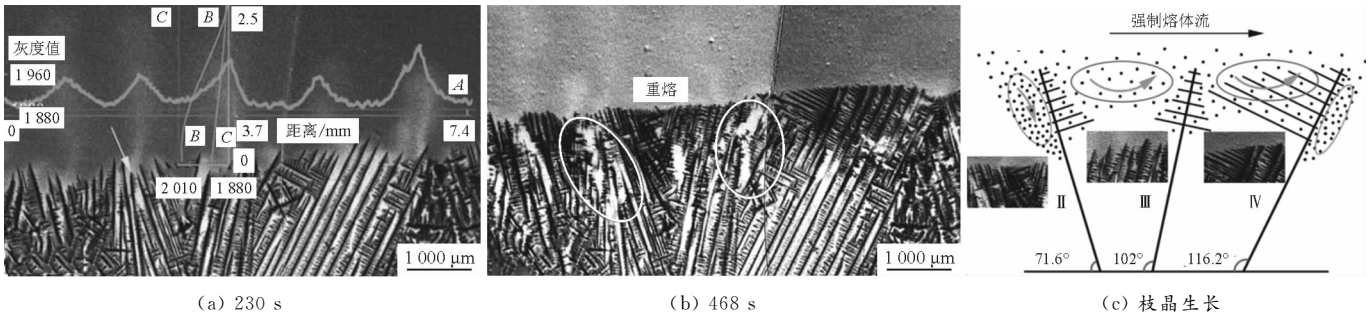


图 28 Sn-50Pb 合金凝固过程中有/无行波磁场作用下溶质分布和枝晶生长^[75]
Fig.28 Solute distribution and dendrite growth of Sn-50Pb alloy during solidification with or without traveling magnetic field^[75]
促进了溶质浓度的重新分布和枝晶形态的变化。

除了讨论磁场对枝晶的影响外,还研究了磁场力对其他微观组织的影响。XU Y J 等^[76]利用扫描电镜和同步辐射 X 射线成像技术研究了行波磁场对铝合金晶粒和微孔形成的影响;WANG J 等^[77]分析了定向凝固过程中固体/液体界面的形状演变,揭示了熔体中由液态磁场力产生的热电磁力流动效应,并通过三维数值模拟和熔体中流动的速度测量证实了瞬变电磁流动的存在,见图 29。LI X 等^[78]研究了轴向强磁场对 Zn-Cu 包晶合金组织凝固过程的影响,见图 30。可见,随着外加磁场的增大,晶粒由柱状晶向等轴晶转变,等轴晶粒尺寸逐渐减小。同时,在液/固界面附近有热电磁力作用

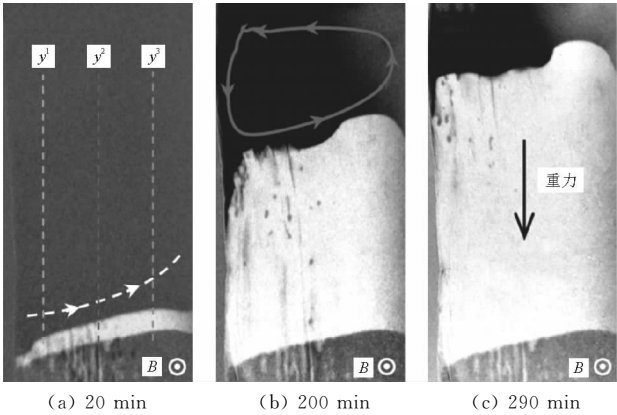


图 29 行波磁场作用下 Al-4Cu 合金定向凝固^[77]
Fig.29 Directional solidification of Al-4Cu alloy under traveling magnetic field^[77]

在固体上,并随磁场的增大而线性增大,这是由于磁晶各向异性引起的磁矩效应被消除,热电磁效应对凝固组织的影响很大。

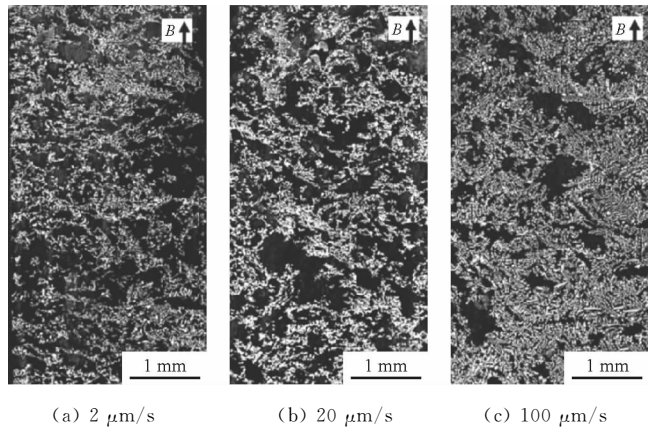


图 30 强磁场作用下定向凝固过程中不同生长速度的 Zn-5.0Cu 合金组织演变^[78]

Fig.30 Microstructure evolution of Zn-5.0Cu alloy at various growth speeds with high-intensity magnetic^[78]

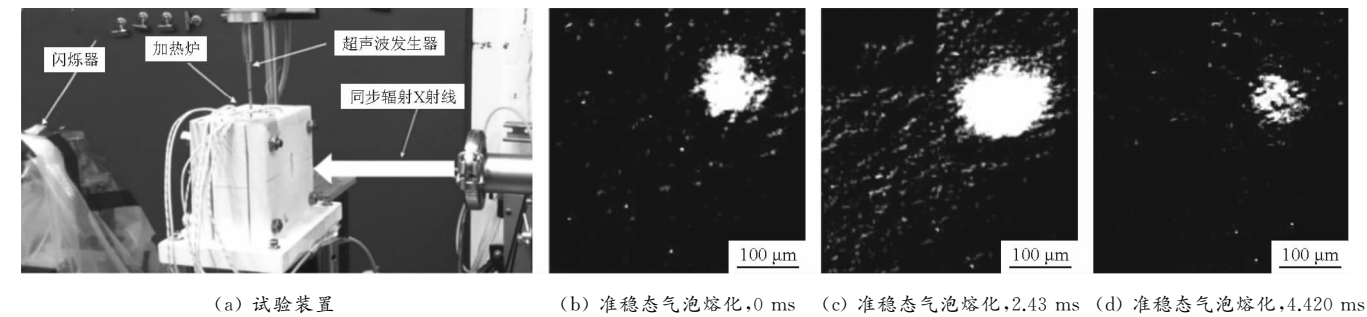


图 31 Sn-Bi 合金中准稳态气泡液化过程及其试验装置^[79]

Fig.31 Quasi-steady bubble melting and testing device^[79]

力学成像的分辨率特点,为揭示该过程的动态演变机制提供了有力支撑。

NAGIRA T 等^[82]通过同步辐射 X 射线 2D 成像技术原位观察了超声振动下 Sn-Bi 合金的枝晶破碎行为,发现原位超声处理显著增强了柱状区枝晶臂的破碎,超声波的二次效应对凝固组织的改变起着重要作用,见图 32。ZHANG Z G 等^[83]采用同步辐射 X 射线断层扫描

2.3 超声场作用下的凝固行为

国内外针对超声场作用下的凝固行为研究主要集中在熔液中气泡的转变、枝晶生长及破碎等问题。LEE T L 等^[79]通过美国阿贡国家实验室同步辐射光源,在 Sn-Bi 合金中首次捕捉到了液态金属中超声气泡的动态变化。图 31 为试验装置及准稳态气泡熔化过程,该研究对理解超声气泡的高瞬态行为及其与周围液态金属的相互作用提供了更多定量数据。同时,还进一步研究了气泡的振荡、内爆及破裂过程,并发现了超声气泡在一定程度上会影响枝晶生长,促进晶粒倍增效应进而细化晶粒^[80]。TAN D Y 等^[81]在研究超声气泡内爆的基础上,还分析了超声与半固态熔体的相互作用,发现了超声在半固态熔体中瞬时形成的强旋流能有效地将固体颗粒从液固界面分离出来,并重新分布到液体中。同时,外加场作用下金属的凝固过程微结构的演变极快,如在超声场作用下,熔液中气泡的动态变化在数百毫秒内完成,由于同步辐射 X 射线成像技术快速动

技术,对超声作用下 Al-15Cu 合金凝固过程中枝晶组织的破碎和动态生长行为进行了原位研究,见图 33。研究表明,在该试验条件下,超声处理对 Al 枝晶的优先晶体生长方向没有明显影响。但该处理使得枝晶碎片分布均匀,从而降低了枝晶生长速率,有利于晶粒的细化。研究结果对于进一步验证数值模型和辅助超声波熔体加工的工业应用有重要价值。

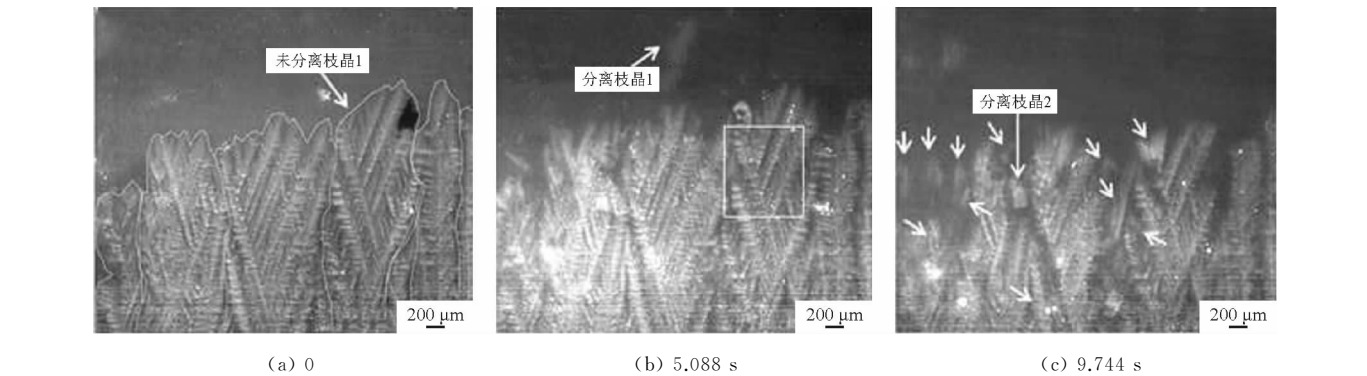


图 32 超声振动下 Sn-Bi 合金的枝晶破碎行为^[82]

Fig.32 Dendrite broken behavior of Sn-Bi alloy under ultrasonic vibration^[82]

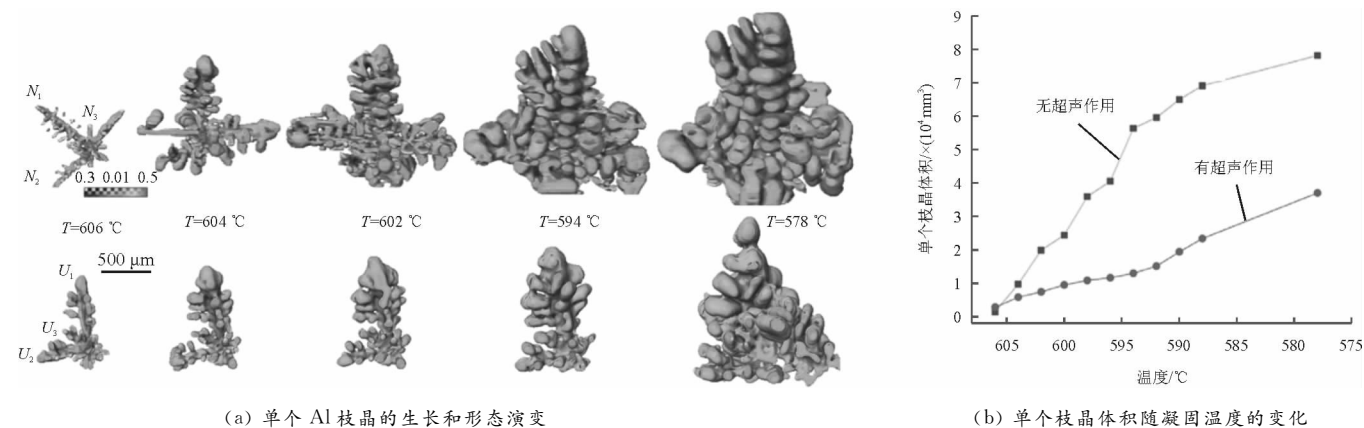


图 33 Al-15Cu 合金在有/无超声作用下单个枝晶生长和体积变化^[83]
Fig.33 Single dendrite growth and volume variation of Al-15Cu with or without ultrasonication^[83]

3 结论与展望

在过去的几十年,研究者基于同步辐射 X 射线成像技术对金属凝固过程进行了大量研究,提出了许多新机制与新理论,在凝固过程中晶体结构演变、缺陷的形成与演化及外加场对金属凝固行为的影响等方面,取得了大量有价值的结果。不仅为解决高端材料领域的制备与组织演化问题提供了巨大帮助,还在数值模型的建立、验证及预测等方面提供了新的视角。

然而,现有的研究中大多讨论单一物理场作用下对金属凝固行为,并未考虑多场耦合作用的影响,未来应进一步开展热场—压力场—物理外场等多场耦合作用下金属凝固过程的原位表征,从而更好地指导高端新材料的制备。同时,目前基于同步辐射 X 射线成像技术研究虽考虑了实际的生产环境,但仍无法实现部分工况如压铸、电弧增材制造及电子束增材制造等工业生产过程。因此,应进一步加强建设基于真实金属成形的各类原位研究装置和技术,这对于建立试验结果与实际生产之间的联系具有重要意义。

最后,由于同步辐射 X 射线成像技术受分辨率等因素的限制,部分凝固过程的研究还需进一步联合其他试验手段,如利用同步辐射研究枝晶的形核过程仅是后期的形核长大,真正意义上早期的形核还需结合其他技术,如 PDF(原子对分布函数)作为补充技术进行解析。若进一步建立更高空间分辨率、更高通量的同步辐射线站,可对材料在制备加工过程中更小尺度的微观组织演变进行原位观察,如热处理过程中纳米级物相的析出和回溶等,从而助力我国在高端材料领域的发展。

参 考 文 献

[1] ABOU-KHALIL L, DA CRUZ K S, REINHART G, et al. Influence of growth velocity on fragmentation during directional solidification of Al-14Sn alloy studied by in-situ synchrotron X-radiography[J]. Acta Materialia, 2022, 241: 118 370.

[2] KÖNIG H H, PETTERSSON N H, DURGA A, et al. Solidification modes during additive manufacturing of steel revealed by high-speed X-ray diffraction[J]. Acta Materialia, 2023, 246: 118 713.

[3] TANG Y, WU Y, ZHANG Y, et al. Intermittent nucleation and periodic growth of grains under thermo-solutal convection during directional solidification of Al-Cu alloy[J]. Acta Materialia, 2021, 212: 116 861.

[4] CAI B, WANG J, KAO A, et al. 4D synchrotron X-ray tomographic quantification of the transition from cellular to dendrite growth during directional solidification[J]. Acta Materialia, 2016, 117: 160-169.

[5] HUSSEINI N S, KUMAR D P, YI J Z, et al. Mapping single-crystal dendritic microstructure and defects in nickel-base superalloys with synchrotron radiation[J]. Acta Materialia, 2008, 56: 4 715-4 723.

[6] AZEEM M A, LEE P D, PHILLION A B, et al. Revealing dendritic pattern formation in Ni, Fe and Co alloys using synchrotron tomography[J]. Acta Materialia, 2017, 128: 241-248.

[7] SHUAI S S, GUO E Y, PHILLION A B, et al. Fast synchrotron X-ray tomographic quantification of dendrite evolution during the solidification of Mg-Sn alloy[J]. Acta Materialia, 2016, 118: 260-269.

[8] CASARI D, MIRIHANAGE W U, FALCH K V, et al. α -Mg primary phase formation and dendritic morphology transition in solidification of a Mg-Nd-Gd-Zn-Zr casting alloy[J]. Acta Materialia, 2016, 116: 177-187.

[9] WANG Y B, PENG L M, JI Y Z, et al. Effect of cooling rates on the dendritic morphology transition of Mg-6Gd alloy by in situ X-ray radiography[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2018, 34: 1 142-1 148.

[10] CHATCHARIT K, SUGIYAMA A, MORISHITA K, et al. Time evolution of solidification structure in ductile cast iron with hyper-eutectic compositions[J]. International Journal of Metalcasting, 2020, 14: 794-801.

[11] WIGGER T, ANDRIOLLO T, XU C. In situ synchrotron investigation of degenerate graphite nodule evolution in ductile cast iron[J]. Acta Materialia, 2021, 221: 117 367.

[12] AZEEM M A, BJERRE M K, ATWOOD R C, et al. Synchrotron quantification of graphite nodule evolution during the solidification of cast iron[J]. Acta Materialia, 2018, 155: 393-401.

[13] BJERRE M K, AZEEM M A, TIEDJE N S, et al. A graphite nodule growth model validated by in situ synchrotron X-ray tomography[J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2018, 26: 085 012.

- [14] TIEDJE N S, BJERRE M K, AZEEM M A, et al. Analysis of local conditions on graphite growth and shape during solidification of ductile cast iron[J]. Transactions of the Indian Institute of Metals, 2018, 71(11): 2 699-2 705.
- [15] GUO E Y, SHUAI S S, KAZANTSEV D, et al. The influence of nanoparticles on dendritic grain growth in Mg alloys[J]. Acta Materialia, 2018, 152: 127-137.
- [16] SHUAI S S, GUO E Y, WANG J, et al. Synchrotron tomographic quantification of the influence of Zn concentration on dendritic growth in Mg-Zn alloys[J]. Acta Materialia, 2018, 156: 287-296.
- [17] WANG M Y, WILLIAMS J J, JIANG L, et al. Dendritic morphology of alpha-Mg during the solidification of Mg-based alloys: 3D experimental characterization by X-ray synchrotron tomography and phase-field simulations[J]. Scripta Materialia, 2011, 65(10): 855-858.
- [18] WANG M Y, XU Y J, JING T, et al. Growth orientations and morphologies of alpha-Mg dendrites in Mg-Zn alloys[J]. Scripta Materialia, 2012, 67(7-8): 629-632.
- [19] WANG M Y, JING T, LIU B C. Phase-field simulations of dendrite morphologies and selected evolution of primary alpha-Mg phases during the solidification of Mg-rich Mg-Al-based alloys[J]. Scripta Materialia, 2009, 61(8): 777-780.
- [20] WANG M Y, XU Y J, ZHENG Q W, et al. Dendritic growth in Mg-based alloys: phase-field simulations and experimental verification by X-ray synchrotron tomography[J]. Metallurgical and Materials Transactions, 2014, A45(5): 2 562-2 574.
- [21] YANG M, XIONG S M, GUO Z. Effect of different solute additions on dendrite morphology and orientation selection in cast binary magnesium alloys[J]. Acta Materialia, 2016, 112: 261-272.
- [22] DU J L, ZHANG A, GUO Z P, et al. Effect of additional solute elements ($X = \text{Al, Ca, Y, Ba, Sn, Gd}$ and Zn) on crystallographic anisotropy during the dendritic growth of magnesium alloys[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2019, 775: 322-329.
- [23] YASUDA H, YAMAMOTO Y, NAKATSUKA N, et al. In situ observation of solidification phenomena in Al-Cu and Fe-Si-Al alloys[J]. International Journal of Cast Metals Research, 2009, 22(1-4): 15-21.
- [24] FLEMINGS M C, KATTAMIS T Z, BARDES B P. Dendrite arm spacing in aluminum alloys[J]. AFS Transactions, 1991, 89: 501.
- [25] TERZI S, SALVO L, SUERY M, et al. Coarsening mechanisms in a dendritic Al-10Cu alloy[J]. Acta Materialia, 2010, 58: 20-30.
- [26] FIFE J L, GIBBS J W, GULSOY E B, et al. The dynamics of interfaces during coarsening in solid-liquid systems[J]. Acta Materialia, 2014, 70: 66-78.
- [27] MARSH S P, GLICKSMAN M E. Overview of geometric effects on coarsening of mushy zones[J]. Metallurgical and Materials Transactions, 1996, A27: 557.
- [28] GUO E Y, PHILLION A B, CAI B, et al. Dendritic evolution during coarsening of Mg-Zn alloys via 4D synchrotron tomography[J]. Acta Materialia, 2016, 123: 373-382.
- [29] SHUAI S S, GUO E Y, PHILLION A B, et al. Fast synchrotron X-ray tomographic quantification of dendrite evolution during the solidification of Mg-Sn alloys[J]. Acta Materialia, 2016, 118: 260-269.
- [30] COOL T, VOORHEES P W. The evolution of dendrites during coarsening: Fragmentation and morphology[J]. Acta Materialia, 2017, 127: 359-367.
- [31] LIMODIN N, SALVO L, BOLLER E, et al. In situ and real-time 3-D microtomography investigation of dendritic solidification in an Al-10Cu alloy[J]. Acta Materialia, 2009, 57: 2 300-2 310.
- [32] SUN Y, CECEN A, GIBBS J W, et al. Analytics on large micro-structure datasets using two-point spatial correlations: Coarsening of dendritic structures[J]. Acta Materialia, 2017, 132: 374-388.
- [33] 朱鸣芳, 邢丽科, 方辉, 等. 合金凝固枝晶粗化的研究进展[J]. 金属学报, 2018, 54(5): 789-800.
- [34] ZHU M F, STEFANESCU D M. Virtual front tracking model for the quantitative modeling of dendritic growth in solidification of alloys[J]. Acta Materialia, 2007, 55: 1 741-1 755.
- [35] NEUMANN-HEYME H, ECKERT K, BECKERMANN C. Dendrite fragmentation in alloy solidification due to sidearm pinch-off[J]. Physical Review, 2015, E92: 060 401.
- [36] WESNER E, CHOUDHURY A, AUGUST A, et al. A phase-field study of large-scale dendrite fragmentation in Al-Cu[J]. Journal of Crystal Growth, 2012, 359: 107-121.
- [37] YU J M, WANDERKA N, RACK A, et al. Formation of intermetallic δ phase in Al-10Si-0.3Fe alloy investigated by in situ 4D X-ray synchrotron tomography[J]. Acta Materialia, 2017, 129: 194-202.
- [38] LI H L, AN R, WANG C Q, et al. In situ quantitative study of microstructural evolution at the interface of $\text{Sn}_{3.0}\text{Ag}_{0.5}\text{Cu}/\text{Cu}$ solder joint during solid state aging[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2015, 634: 94-98.
- [39] FENG S K, LIOTTI E, LUI A, et al. In-situ X-ray radiography of primary Fe-rich intermetallic compound formation[J]. Acta Materialia, 2020, 196: 759-769.
- [40] SALLEH M A A M, MCDONALD S D, YASUDA H, et al. Rapid Cu_6Sn_5 growth at liquid Sn/solid Cu interfaces[J]. Scripta Materialia, 2015, 100: 17-20.
- [41] ZHAO N, ZHONG Y, HUAN M L, et al. In situ study on interfacial reactions of Cu/Sn-9Zn/Cu solder joints under temperature gradient[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2016, 682: 1-6.
- [42] MA H T, KUNWAR A, SUN J H, et al. In situ study on the increase of intermetallic compound thickness at anode of molten tin due to electromigration of copper[J]. Scripta Materialia, 2015, 107: 88-91.
- [43] WANG T M, CAO F, ZHOU P, et al. Study on diffusion behavior and microstructural evolution of Al/Cu bimetal interface by synchrotron X-ray radiography[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2014, 616: 550-555.
- [44] CAO F, ZHANG P, ZOU J T, et al. The formation and growth of intermetallic compounds during interdiffusion of Al/Cu bimetals[J]. Materials Research Express, 2022, 9: 056 503.
- [45] CAO F, WANG R, ZHANG P, et al. In situ investigation of microstructural evolution and intermetallic compounds formation at liquid al/solid cu interface by synchrotron X-ray radiography[J]. Materials, 2022, 15: 5 647.
- [46] DING Z Y, HU Q D, LU W Q, et al. Intergrowth mechanism and morphology prediction of faceted Al_3Ni formed during solidification by a spatial geometric model[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2020, 54: 40-47.
- [47] DING Z Y, HU Q D, LU W Q, et al. In-situ observation on the formation of intermetallics compounds at the interface of liquid Al/solid Ni[J]. Scripta Materialia, 2017, 130: 214-218.
- [48] LU W Q, ZHANG N F, DING Z Y, et al. Bubble growth, intermetallic compounds dissolution and their interactions during heating of an Al-5Mn alloy by in-situ synchrotron radiography[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2020, 822: 153 554.
- [49] LU W Q, ZHANG N F, REN N, et al. Bubble-induced formation of new intermetallic compounds in an Al-Mn alloy during heating observed by synchrotron radiography[J]. Materialia, 2021, 15: 100 991.
- [50] DING Z Y, HU Q D, LU W Q, et al. A full view of the interfacial behavior between the liquid Al and solid Ni by synchrotron radi-

- tion[J]. Metallurgical and Materials Transactions, 2019, A50(1): 300-310.
- [51] DING Z Y, HU Q D, LU W Q, et al. In-Situ observation on the diversified morphology and growth behavior of Al_3Ni phase at the liquid Al/Solid Ni interface[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2022, 58(4): 567-580.
- [52] LIAO Y, HU Q D, DING Z Y, et al. Effect of cooling rate on the 3D morphology of the proeutectic Al_3Ni intermetallic compound formed at the Al/Ni interface after solidification[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2021, 69: 60-68.
- [53] ZHAO Y L, SONG D F, WANG H L, et al. Revealing the influence of Fe on Fe-rich phases formation and mechanical properties of cast Al-Mg-Mn-Fe alloys[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 901: 163 666.
- [54] SONG Z H, MAGDYSYUK O V, TANG L, et al. Growth dynamics of faceted $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ intermetallic revealed by high-speed synchrotron X-ray quantification [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 861: 158 604.
- [55] BOGNO A, NGUYEN-THI H, BUFFET A, et al. Analysis by synchrotron X-ray radiography of convection effects on the dynamic evolution of the solid-liquid interface and on solute distribution during the initial transient of solidification[J]. Acta Materialia, 2011, 59: 4 356-4 365.
- [56] LIOTTI E, ARTETA C, ZISSERMAN A, et al. Crystal nucleation in metallic alloys using X-ray radiography and machine learning [J]. American Association for the Advancement of Science, 2018, 4: 4 004.
- [57] JIA Y W, HUANG H J, FU Y N, et al. An in situ investigation of the solute suppressed nucleation zone in an Al-15Cu alloy inoculated by Al-Ti-B[J]. Scripta Materialia, 2019, 167: 6-10.
- [58] ZHANG T T, YU W B, MA C S, et al. The effect of different high pressure die casting parameters on 3D microstructure and mechanical properties of AE44 magnesium alloy[J]. Journal of Magnesium and Alloys, in press, <https://doi.org/10.1016/j.jma.2022.05.001>.
- [59] MA C S, YU W B, ZHANG T T, et al. The effect of slow shot speed and casting pressure on the 3D microstructure of high pressure die casting AE44 magnesium alloy[J]. Journal of Magnesium and Alloys, 2023, 11(2): 753-761.
- [60] PLANCHER E, GRAVIER P, CHAUVET E, et al. Tracking pores during solidification of a Ni-based superalloy using 4D synchrotron microtomography[J]. Acta Materialia, 2019, 181: 1-9.
- [61] ZHAO C, FEZZAA K, CUNNINGHAM R W, et al. Real-time monitoring of laser powder bed fusion process using high-speed X-ray imaging and diffraction[J]. Scientific Reports, 2017(7): 3 602.
- [62] ZHAO C, GUO Q L, LI X X, et al. Bulk explosion induced metal spattering during laser processing[J]. Physical Review, 2019, X(9): 021 052.
- [63] LEUNG C L A, LUCZYNIC D, GUO E Y, et al. Quantification of interdependent dynamics during laser additive manufacturing using X-ray imaging informed multi-physics and multiphase simulation[J]. Advanced Science, 2022, 36(9): 2 203 546.
- [64] HUANG Y Z, FLEMING T G, CLARK S J, et al. Keyhole fluctuation and pore formation mechanisms during laser powder bed fusion additive manufacturing[J]. Nature Communications, 2022(13): 1 170.
- [65] CHEN Y H, CLARK S J, LEUNG C L A, et al. In-situ Synchrotron imaging of keyhole mode multi-layer laser powder bed fusion additive manufacturing[J]. Applied Materials Today, 2020, 20: 100 650.
- [66] HOJJATZADEH S M H, PARAB N D, YAN W T, et al. Pore elimination mechanisms during 3D printing of metals[J]. Nature Communication, 2019(10): 3 088.
- [67] YANG F F, CHEN Z N, CAO F, et al. Grain nucleation and growth behavior of a Sn-Pb alloy affected by direct current: An in situ investigation[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2017, 33: 1 134-1 140.
- [68] ZHU J, WANG T M, CAO F, et al. Real time observation of equiaxed growth of Sn-Pb alloy under an applied direct current by synchrotron microradiography[J]. Materials Letters, 2012, 89: 137-139.
- [69] WANG T M, ZHU J, KANG H J, et al. In situ synchrotron X-ray imaging on morphological evolution of dendrites in Sn-Bi hypoeutectic alloy under electric currents[J]. Applied Physics, 2014, A117(3): 1 059-1 066.
- [70] WANG T M, XU J J, XIAO T Q, et al. Evolution of dendrite morphology of a binary alloy under an applied electric current: An in situ observation[J]. Physical Review, 2010, E81: 042 601.
- [71] XUAN Z J, MAO F, CAO Z Q. In situ observation on the solidification of Sn-10Cu hyperperitectic alloy under direct current field by synchrotron microradiography [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 721: 126-133.
- [72] HE J Y, LIN K L, WU A T. The diminishing of crystal structure of Sn_9Zn alloy due to electrical current stressing[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2015, 619: 372-377.
- [73] WANG T H, LIN K L. The dissolution and supersaturation of Zn in the Sn_9Zn solder under current stressing[J]. Journal of Electronic Materials, 2016, 45(1): 164-171.
- [74] LIOTTI E, LUI A, VINCENT R, et al. A synchrotron X-ray radiography study of dendrite fragmentation induced by a pulsed electromagnetic field in an Al-15Cu alloy[J]. Acta Materialia, 2014, 70: 228-239.
- [75] CAO F, YANG F F, KANG H J, et al. Effect of traveling magnetic field on solute distribution and dendritic growth in unidirectionally solidifying Sn-50Pb alloy: An in situ observation[J]. Journal of Crystal Growth, 2016, 450: 91-95.
- [76] XU Y J, WEI L J, HAN B S, et al. Effect of a traveling magnetic field on micropore formation in Al-Cu alloys[J]. Metals, 2018, 8(6): 448.
- [77] WANG J, FAUTRELLE Y, REN Z M, et al. Thermoelectric magnetic flows in melt during directional solidification[J]. Applied Physics Letters, 2014, 104: 121 916.
- [78] LI X, GAGNOUD A, WANG J, et al. Effect of a high magnetic field on the microstructures in directionally solidified Zn-Cu peritectic alloys[J]. Acta Materialia, 2014, 73: 83-96.
- [79] LEE T L, KHONG J C, FEZZAA K, et al. Ultrafast X-ray imaging and modelling of ultrasonic cavitations in liquid metal[J]. Materials Science Forum, 2013, 765: 190-194.
- [80] MI J W, TAN D Y, LEE T L. In situ synchrotron X-ray study of ultrasound cavitation and its effect on solidification microstructures [J]. Metallurgical and Materials Transactions, 2015, B46: 1 615-1 619.
- [81] TAN D Y, LEE T L, KHONG J C, et al. High-speed synchrotron X-ray imaging studies of the ultrasound shockwave and enhanced flow during metal solidification processes[J]. Metallurgical and Materials Transactions, 2015, A46: 2 851-2 861.
- [82] NAGIRA T, NAKATSUKA N, YASUDA H, et al. Impact of melt convection induced by ultrasonic wave on dendrite growth in Sn-Bi alloys[J]. Materials Letters, 2015, 150: 135-138.
- [83] ZHANG Z G, WANG C N, KOE B, et al. Synchrotron X-ray imaging and ultrafast tomography in situ study of the fragmentation and growth dynamics of dendritic microstructures in solidification under ultrasound[J]. Acta Materialia, 2021, 209: 116 796.