

Simulation der bei der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika entstehenden Mikrostruktur mit der Phasenfeldmethode

Zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Ingenieurwissenschaften
der Fakultät für Maschinenbau
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

genehmigte
Dissertation

von

M. Sc. Philipp Steinmetz

Tag der mündlichen Prüfung
Hauptreferent:
Korreferent:

06. Juli 2017
Prof. Dr. rer. nat. Britta Nestler
Prof. Dr. rer. nat. Dr. h. c. Lorenz Ratke

Kurzfassung

Während der gerichteten Erstarrung ternärer eutektischer Legierungen bilden sich aus der Schmelze drei Festphasen. Dabei entwickelt sich, abhängig von den Prozessbedingungen, eine Vielzahl von Mustern in der Mikrostruktur. Aufgrund der daraus resultierenden unterschiedlichen mechanischen Eigenschaften ist ein Verständnis der grundlegenden Mechanismen, welche die Mikrostrukturentwicklung in multikomponentigen und -phasigen Systemen steuern, von großer Bedeutung.

Um ein besseres Verständnis der Mikrostrukturentwicklungsmechanismen zu erlangen, wurden im Rahmen dieser Thesis großskalige Phasenfeldsimulationen auf bis zu 171 696 Prozessoren (CPUs) durchgeführt. Ausgehend von der Validierung des Modells mit analytischen Ansätzen für ein ideales ternäres eutektisches System und von Untersuchungen zur Bestimmung der notwendigen Gebietsgrößen, wird der Einfluss verschiedener Gleichgewichtskonzentrationen und Grenzflächenenergien auf die entstehenden Muster analysiert.

Aufbauend auf diesen Ergebnissen wird die gerichtete Erstarrung von Aluminium-Kupfer-Silber (Al-Ag-Cu) untersucht, bei der eine gute qualitative und quantitative Übereinstimmung mit experimentellen Schliffbildern erzielt wird. Das System Al-Ag-Cu wird wegen seiner relativ niedrigen ternären eutektischen Temperatur und den annähernd gleichen Phasanteilen in Schnittbildern bei Raumtemperatur häufig zur experimentellen Untersuchung der Musterbildung während der gerichteten Erstarrung verwendet. Bei der Verwendung von großskaligen Phasenfeldsimulationen zeigt sich, dass die verschiedenen lokalen Muster aus einem Optimierungsprozess der Unterkühlung und der Phasenanordnung in der unmittelbaren Nachbarschaft entstehen. Weiterhin wurden Phasenfeldsimulationen mit systematisch variierten Zusammensetzungen der Schmelze in der Nähe der Konzentration des ternären eutektischen Punktes durchgeführt. Aufgrund der gleichen Tendenzen in der entstehenden Mikrostruktur und den auftretenden Phasenfraktionen, wie in einem experimentellen Schliffbild, werden Erklärungsansätze für die unterschiedlichen entstehenden Muster hergeleitet.

Abstract

During the directional solidification of ternary eutectic alloys, three solid phases evolve from the melt. In this process, a large variety of patterns is forming in the microstructure, depending on the process conditions. Due to the resulting different mechanical properties is the understanding of the fundamental mechanisms controlling the morphology development in multi-phase and -component systems of high interest.

To gain a better understanding of microstructure evolution processes, large-scale phase-field simulations with up to 171 696 Central Processor Units (CPUs) were conducted as part of this thesis. Based on a validation of the model with analytic approaches for an ideal ternary eutectic system and studies to determine the necessary domain size, the influence of different equilibrium concentrations and interface energies on the evolving patterns is analyzed.

These results were used to study the directional solidification of Aluminium-Copper-Silver (Al-Ag-Cu) in which a good qualitative and quantitative accordance with experimental micrographs is found. The system Al-Ag-Cu is often used in experiments to study the pattern formation during directional solidification, because of the relative low ternary eutectic temperature and the nearly equal phase fractions in cross sections at room temperature. It is shown, that the local patterns in large-scale simulations result from an optimization process of the undercooling and the phase arrangement in the vicinity of the considered domain. Additionally, phase-field simulations with systematically varied compositions of the melt, in the vicinity of the concentration of the ternary eutectic point, were conducted. Due to the same tendencies in the microstructure and the phase fractions like in an experimental micrograph, explanation approaches for the different arising patterns are derived.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Stand der Forschung	5
2.1. Die Entwicklung der Phasenfeldmethode	5
2.1.1. Multiphasen- und Multikomponenten-Modelle	8
2.1.2. Kopplung mit thermodynamischen Datenbanken	8
2.1.3. Weitere Modellverbesserungen	9
2.2. Gerichtete Erstarrung	10
2.2.1. Dendritisches Wachstum	11
2.2.2. Eutektische Erstarrung	13
2.2.3. Zellstrukturen und eutektische Kolonien	17
2.3. Methoden zur Validierung	18
3. Phasenfeldmodell	21
3.1. Evolutionsgleichungen der Phasenfeldparameter	21
3.2. Evolutionsgleichungen der chemischen Potentiale	28
3.3. Physikalische Modelloptimierungen	30
4. Simulationsaufbau	33
5. Verwendete Methoden zur Quantifizierung und Validierung der Mikrostruktur	35
5.1. Nächste-Nachbarn-Statistiken	35
5.2. Morphologieklassifizierung basierend auf den Flächenträgheitsmomenten 2. Ordnung	36
5.3. Jackson-Hunt-Analyse	41
5.3.1. Berechnung der solutalen Unterkühlung	41
5.3.2. Berechnung der krümmungsbasierten Unterkühlung	45
5.3.3. Berechnung der durchschnittlichen Frontunterkühlung	46
5.4. Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen	48
6. Ideales System	53
6.1. Verwendete Simulationsparameter	55
6.2. Quantitativer Vergleich zwischen Simulation und Analytik	58
6.2.1. Jackson-Hunt-Analyse für die Anordnungen $\alpha - \beta - \gamma$ und $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$	58
6.2.2. Jackson-Hunt-Analyse in 3D für ein Kettenmuster	61
6.2.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	69
6.3. Numerische Jackson-Hunt-Analyse in 3D für ein hexagonales Muster	70
6.4. Einfluss der Gebietsgröße auf die entstehenden Muster	70
6.5. Stabilität der auftretenden Muster	77

6.6.	Musterbildung in großskaligen Simulationen	81
6.6.1.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	85
7. Idealisierte Systeme		87
7.1.	Einfluss verschiedener Gleichgewichtskonzentrationen auf die auftretenden Muster	87
7.2.	Einfluss von Grenzflächenenergien auf die auftretenden Muster	94
7.2.1.	Untersuchung des Verkippungswinkels in zweidimensionalen Simulationen	95
7.2.2.	Untersuchung von Spiralwachstum in dreidimensionalen Simulationen	96
7.2.3.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	102
8. Al-Ag-Cu		105
8.1.	Hochtemperaturmuster CAL	107
8.2.	Niedrigtemperaturmuster EXP	109
8.2.1.	Qualitativer Vergleich von Experimenten und dem Datensatz EXP . .	110
8.2.2.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	114
8.3.	Bestimmung der Stationarität der Mikrostrukturentwicklung und der statistischen Volumenelemente	114
8.3.1.	Datensatz CAL	114
8.3.2.	Datensatz EXP	117
8.3.3.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	122
8.4.	Quantitativer Vergleich zwischen Simulation und Experiment	122
8.4.1.	Hauptkomponentenanalyse	123
8.4.2.	Nächste-Nachbarn-Statistiken	124
8.4.3.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	126
8.5.	Untersuchung der Unterkühlungen	127
8.5.1.	Jackson-Hunt-Analyse in 3D und Vergleich mit analytischen Ansätzen	127
8.5.2.	Vergleich der Unterkühlungen bei verschiedenen Mustern und Erklärungsansatz für unterschiedliche Muster in großskaligen Simulationen	130
8.5.3.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	137
8.6.	Einfluss der Konzentration der Schmelze auf die auftretenden Muster	138
8.6.1.	Systematische Variation der Konzentrationen in der Schmelze	138
8.6.2.	Erklärungsansatz zum Auftreten komplexer Musteranordnungen in Experimenten	144
8.6.3.	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	147
8.7.	Vorhersage der Mikrostrukturentwicklung in Abhängigkeit von Prozessgrößen mit der Hauptkomponentenanalyse	150
9. Fazit und Zusammenfassung		155
10. Ausblick		157
Literaturverzeichnis		163
A. Anhang		187

1. Einleitung

Die Entwicklung neuer Werkstoffe, die zur Bewältigung ökonomischer und ökologischer Herausforderungen notwendig sind, ist mit einem hohen Aufwand verbunden. Von der Entdeckung des Materials bis zu seiner Anwendung in kommerziellen Produkten vergehen aktuell ungefähr 20 Jahre [1–4]. Der Einsatz von neuartigen und optimierten Werkstoffen erfordert definierte Materialeigenschaften, welche von den physikalischen Eigenschaften der verwendeten chemischen Elementen, ihrer Zusammensetzung und den Prozessbedingungen in der Fertigung abhängen [5–7]. Im Fokus der Materialentwicklung steht insbesondere die Kombination verschiedener chemischer Elemente bzw. Materialien zur Ausnutzung ihrer spezifischen Vorteile, wie sie insbesondere für Anwendungen mit hohen mechanischen und/oder thermischen Belastungen, z. B. in der Luft- und Raumfahrt, notwendig sind. Die Mischung der Elemente in Werkstoffen kann beispielsweise durch das Erstarren von multikomponentigen Legierungen während des Gießens erreicht werden.

In der industriellen Fertigung ist das Gießen von Legierungen eines der wichtigsten urformenden Produktionsverfahren [8], bei dem die Eigenschaften des entstehenden Werkstücks durch die während der Erstarrung entstehende Mikrostruktur maßgeblich festgelegt wird [5–7, 9–13]. Um das Verhalten des Werkstoffes und seine mechanischen Eigenschaften mit einer Qualität, die für moderne Ingenieuranwendungen notwendig ist kontrollieren zu können, ist ein besseres Verständnis der Prozesse, die zum Entstehen der Mikrostruktur führen, notwendig.

Eine Klasse von Materialien, die sich zur Untersuchung dieser Prozesse eignen, sind ternäre Eutektika, aufgrund der Vielzahl unterschiedlicher Muster, die sich während der gerichteten Erstarrung entwickelt [14–18]. Ein ternäres eutektisches System ist dadurch gekennzeichnet, dass sich eine Schmelze mit drei Komponenten bei einer definierten Temperatur und Konzentration in drei Festphasen umwandelt und andersherum [19]. Durch ihre veränderbaren mechanischen Eigenschaften haben sie einerseits ein vielversprechendes Potential in technischen Anwendungen und andererseits sind sie von hohem wissenschaftlichem Interesse, da sie es ermöglichen, die grundlegenden physikalischen Prozesse der Mikrostrukturentwicklung zu untersuchen.

Während die Mikrostrukturentwicklungsprozesse in binären Eutektika, d.h. die Umwandlung einer zweikomponentigen Schmelze in zwei Festphasen und andersherum, relativ gut verstanden ist, fehlt ein derartiges Verständnis in ternären und höherkomponentigen Legierungen. Beispielsweise bilden sich während der gerichteten Erstarrung in Schnitten parallel zur Wachstumsfront bei ternären eutektischen Systemen unterschiedliche Muster für gleiche Prozessbedingungen aus [15–18, 20, 21], was noch nicht eindeutig erklärt werden kann.

Ein System, das häufig verwendet wird, um die komplexen Mikrostrukturentwicklungsprozesse in ternären Eutektika zu studieren, ist das System Al-Ag-Cu. Aus der Schmelze entstehen die intermetallischen Phasen Ag_2Al und Al_2Cu sowie die Matrixphase Al, die sich in unterschiedlichen Mustern parallel zur Erstarrungsfront anordnen [14–18]. In der Arbeit von Dennstedt

et al. [21] werden sechs unterschiedliche Muster für teilweise gleiche Prozessbedingungen klassifiziert. Die Ausformung dieser Muster, wie beispielsweise die Abstände der einzelnen Phasenbereiche, korreliert mit der Geschwindigkeit der Erstarrungsfront [22–25].

Die Vorteil des Systems Al-Ag-Cu im Bezug auf experimentelle Untersuchungen sind seine relativ niedrige ternäre eutektische Temperatur (773.6 K) und die annähernd gleichen Phasenanteile in Schnittbildern bei Raumtemperatur. Aufgrund der unterschiedlichen Dichten der Legierungselemente wird weiterhin vermutet, dass schwerkraftinduzierte Segregation in der Schmelze [26, 27] stattfindet, was zu Konvektion führen kann. Aus diesem Grund ist eine Untersuchung der gerichteten Erstarrung dieser Legierung im Rahmen des SETA-Projektes (engl. Solidification along a Eutectic path in Ternary Alloys) [28, 29] auf der internationalen Raumstation ISS (engl. International Space Station) geplant.

Eine Besonderheit des Systems Al-Ag-Cu ist die relativ große Änderung der Löslichkeit von Ag in der Al-Phase, abhängig von der Temperatur. Diese fällt um mehr als 50 % (von 16.9 % auf etwa 8 %) im Bereich von 20 K direkt unterhalb der ternären eutektischen Temperatur [15, 30, 31]. Dies führt, besonders während der gerichteten Erstarrung, zu einer Veränderung der Phasenfraktionen und der entstehenden Mikrostruktur, da für ein gekoppeltes Wachstum der drei Festphasen relativ niedrige Erstarrungsgeschwindigkeiten notwendig sind [15–17] und sich daher gute Bedingungen für die Festphasendiffusion ergeben.

Um das Erstarrungsverhalten von eutektischen Systemen zu untersuchen, haben sich in den vergangenen Jahren Simulationen als eine Möglichkeit neben Experimenten und analytischen Ansätzen etabliert [32]. Simulationen mit der Phasenfeldmethode ermöglichen In-situ-Studien der Mikrostrukturentwicklung in komplexen dreidimensionalen Geometrien für verschiedene physikalische Parameter und Prozessbedingungen. Diese Art von Simulationen werden insbesondere durch den exponentiellen Anstieg in der Leistungsfähigkeit der Computer ermöglicht [33], der es erlaubt, repräsentative Volumenelemente in relativ kurzer Zeit zu berechnen.

Bei der Phasenfeldmethode wird die Grenze zwischen den verschiedenen Phasen, beispielsweise zwischen unterschiedlichen Körnern, als diffuser, stetiger Übergang modelliert. Daher ist ein Verfolgen der Grenzflächen und ein anschließendes Neuvernetzen der Oberflächen nicht notwendig. Die Grundlage von Phasenfeldmodellen ist die Minimierung der Gesamtenergie im System unter Berücksichtigung physikalischer Nebenbedingungen, wie z. B. der Massenerhaltung oder der Impulserhaltung. Zur Berechnung der Nebenbedingungen können weitere physikalische Felder bzw. ihre Evolutionsgleichungen mit den Phasenfeldgleichungen gekoppelt werden [34, 35].

Im Rahmen dieser Arbeit wird die gerichtete Erstarrung ternärer eutektischer Legierungen mit der Phasenfeldmethode mit besonderem Fokus auf das System Al-Ag-Cu untersucht und die sich ausbildende Mikrostruktur analysiert. Dazu wird ein Phasenfeldmodell mit treibenden Kräften basierend auf der Differenz der Großkanonischen Potentiale verwendet [36–38], bei dem neben der Evolution der vier Phasenfeldparameter (drei feste Phasen und eine Schmelze) auch die zeitliche und räumliche Entwicklung der drei chemischen Potentiale (drei chemische Elemente) betrachtet wird.

Zunächst wird der Stand der Forschung bei der gerichteten Erstarrung mehrkomponentiger Legierungen mit Fokus auf die Simulation ternärer Eutektika mit der Phasenfeldmethode in Kapitel 2 gezeigt. Daran anschließend wird in Kapitel 3 das verwendete Phasenfeldmodell vorgestellt. Dabei werden sowohl die genutzten Evolutionsgleichungen gezeigt, wie auch die

physikalischen Modelloptimierungen, die es erlauben, den Rechenaufwand massiv zu reduzieren. In Kapitel 4 wird der Aufbau der Simulationen zur Berechnung der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika dargestellt. Da die gegenseitige Validierung von Simulationen, Experimenten und analytischen Ansätzen in der Wissenschaft essentiell ist, werden in Kapitel 5 Methoden zur Quantifizierung der Mikrostruktur vorgestellt, die in Kapitel 8 für den Vergleich mit experimentellen Schliffbildern genutzt werden. Zusätzlich werden analytische Ansätze zur Vorhersage der Unterkühlungen unter den ternären eutektischen Punkt für zweidimensionales und dreidimensionales Wachstum gezeigt, die in Kapitel 6 und 8 zur Validierung der Simulationen dienen.

Die Ergebnisse dieser Arbeit sind in den Kapiteln 6 bis 8 dargestellt. Zunächst werden in Kapitel 6 grundsätzliche Charakteristiken der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika, wie die notwendige Gebietsgröße und die Stabilität der entstehenden Muster an einem idealen System untersucht. Der Einfluss verschiedener physikalischer Parameter, wie beispielsweise der Gleichgewichtskonzentrationen, die von den thermodynamischen Gibbs-Energien abhängen, und der Grenzflächenenergien wird in Kapitel 7 mit Hilfe idealisierter Systeme analysiert.

Die Simulationsergebnisse der gerichteten Erstarrung des ternären eutektischen Systems Al-Ag-Cu sind in Kapitel 8 dargestellt. Zur Modellierung der Löslichkeitsänderungen werden zwei Systeme genutzt. Für beide wird die jeweils notwendige Gebietsgröße der Simulationen und die notwendige Anzahl an Zeitschritten für stabiles Wachstum bestimmt. Die Ergebnisse werden sowohl mit Experimenten als auch mit analytischen Ansätzen verglichen. Im Fokus der Untersuchung steht die Analyse der physikalischen Zusammenhänge zwischen den Prozessbedingungen und den entstehenden Mustern sowie die Vorhersage der Mikrostrukturentwicklung in Abhängigkeit der Prozessgrößen.

Abschließend werden die Ergebnisse der Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf mögliche weiterführende Arbeiten auf diesem Gebiet vorgestellt.

2. Stand der Forschung

Im folgenden Kapitel wird der Stand der Forschung bei der gerichteten Erstarrung mehrkomponentiger Legierungen mit Fokus auf die Simulation gerichtet erstarrter ternärer Eutektika mit der Phasenfeldmethode vorgestellt. Hierfür wird zunächst die Entwicklung der Phasenfeldmethode (PFM) allgemein beschrieben. Anschließend folgt ein Überblick über Publikationen im Bereich gerichteter Erstarrungen für dendritische und eutektische Strukturen. Abschließend werden verschiedene Validierungsmethoden für Simulationen, Experimente und Analytiken vorgestellt. Eine ähnliche Übersicht über die Entwicklung der Phasenfeldmethode ist ebenfalls in [34] publiziert, an die Teile dieses Kapitels angelehnt sind.

2.1. Die Entwicklung der Phasenfeldmethode

Simulationen mit der PFM haben sich in den letzten Jahren für die Untersuchung von Mikrostrukturen neben Experimenten und analytischen Ansätzen etabliert [34]. Die Verwendung von genaueren Modellen, in Verbindung mit Fortschritten in der Informatik, spiegelt sich in einer besseren Abbildung von realen Mikrostrukturen in den Simulationen auf immer größer werdenden Gebieten wider. Eine Auswahl verschiedener Simulationsergebnisse in Abb. 2.1 zeigt die zeitliche Entwicklung von zweidimensionalen, einkomponentigen zu dreidimensionalen, mehrkomponentigen Systemen. Diese Abbildung ist aus [34] übernommen.

Das Konzept der Modellierung von Grenzflächen zwischen zwei Phasen als diffuser Übergang wurde von van der Waals in den 1870er Jahren [39] eingeführt und in den 1950ern folgte eine Erweiterung mit der Einführung eines Ordnungsparameters zur Beschreibung der jeweiligen Phasen. Dies resultiert in der Ginzburg-Landau-Funktionaltheorie [40, 41]. Sowohl Cahn und Hilliard [42–45], wie auch Allen und Cahn [46] stellen Ansätze vor, um Energiefunktionale vom Ginzburg-Landau-Typ durch Variationsrechnung in partielle Differentialgleichungen umzuformen. Mit diesen Ansätzen können die Evolutionsgleichungen der Ordnungsparameter hergeleitet werden. Die Berechnung der zeitlichen Evolution dieser partiellen Differentialgleichungen führt zu einer Minimierung der betrachteten Energiefunktionale bzw. zu einer Maximierung der Entropie. Dies bedeutet, dass die zeitliche Entwicklung eines Ordnungsparameters und daraus folgend die Umwandlung von einer Phase in eine andere durch die Minimierung der Gesamtenergie im System beschrieben werden kann. Der Zusammenhang zwischen der Energie des Gesamtsystems und Wechselwirkungen in der Mikrostruktur auf atomarer Basis werden von Allen und Cahn in [47, 48] beschrieben.

Vorgängermodelle der Phasenfeldmethode werden u.a. von Halperin et al. in [49], von Langer und Sekerka in [50] sowie von Collins und Levine in [51] vorgestellt. In [49] wird die zeitliche Entwicklung von Modellen mit erhaltenden und nicht-erhaltenden Ordnungsparametern hergeleitet. Dabei zeigt der als “case C” beschriebene Ansatz, welcher in [49, 52] auch “model C”

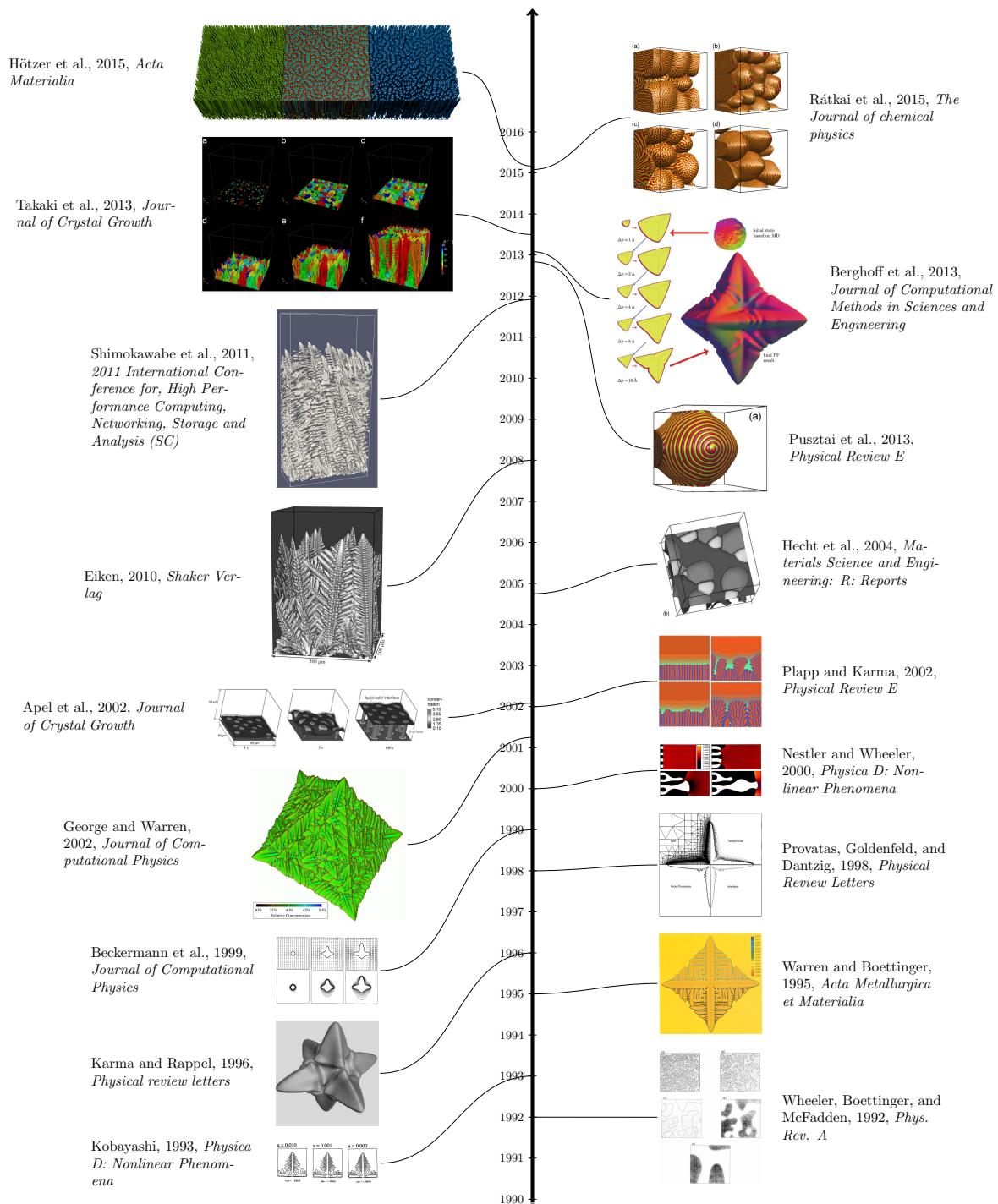


Abbildung 2.1.: Auswahl von verschiedenen Ergebnissen zur Veranschaulichung der zeitlichen Entwicklung der Phasenfeldmethode zur Simulation der Erstarrung von zweidimensionalen einkomponentigen zu dreidimensionalen mehrkomponentigen Systemen von den 1990ern bis 2016. Die Abbildung ist aus [34] entnommen.

genannt wird, bereits die grundsätzlichen Charakteristiken darauf folgender Phasenfeldmodelle. Die Beschreibung der Konzentration als diffuses Feld wird in dem Modell in [50] beschrieben. Ihre Evolution folgt der Minimierung der freien Energie, allerdings ohne Verwendung eines Ordnungsparameters. Bei dem Modell in [51] wird eine gekoppelte Berechnung von Ordnungsparametern und einem Temperaturfeld zur Beschreibung von Kristallwachstum verwendet, ohne dass dieser Ansatz allerdings explizit als Phasenfeldmethode bezeichnet wird. Die Bezeichnung Phasenfeldmethode, zur Beschreibung der zeitlichen Entwicklung des stetigen und stetig differenzierbaren Übergangs zwischen zwei Phasen mit Hilfe eines Ordnungsparameters, wird in den Arbeiten von Caginalp und Fife [53, 54] sowie von Langer [55] aus dem Jahr 1986 eingeführt.

Ausgehend von der Verwendung der vorgestellten Konzepte für die Berechnung von Phasenübergängen in reinen Materialien in einer Dimension, erfolgt eine Erweiterung der Modelle für zweidimensionale Simulationen von Wheeler et al. in [56] für die Berechnung spinodaler Entmischungsvorgänge [57] sowie des Wachstums thermischer Dendriten [56]. Die Berechnung der zeitlichen und räumlichen Evolution von thermischen Dendriten mit der PFM erfordert die Kopplung eines Ordnungsparameters mit einer Diffusionsgleichung der Temperatur. Basierend auf dem Modell von Collins und Levine [51] simulierte Kobayashi [58] 1993 thermisches Dendritenwachstum in einem zweidimensionalen Gebiet von bis zu 300×300 Voxel-Zellen. Die Simulation eines binären eutektischen Systems wurde von Karma et al. [59] 1994 vorgestellt. Dafür erfolgte die Kopplung einer Phasenfeldgleichung, also der zeitlichen Evolution von Ordnungsparametern, mit einer Konzentrationsdiffusionsgleichung.

Im Rahmen der immer noch andauernden Entwicklung der PFM werden verschiedene thermodynamische Potentiale zur Beschreibung der treibenden Kraft zur Phasenumwandlung genutzt. Einer der Ansätze ist die Minimierung der freien Energie, welcher u.a. in [53, 54, 57, 58, 60–63] angewandt wird. Ein weiterer Ansatz verwendet die Maximierung der Entropie im System. Nach dem zweiten Hauptsatz der Thermodynamik strebt ein abgeschlossenes, irreversibles System so lange eine Steigerung der Entropie an, bis ein Maximum erreicht wird. Daher kann die Entwicklung der Entropie zur Berechnung der zeitlichen Evolution eines Systems verwendet werden. Die Verwendung der Entropie in der PFM wird von Penrose und Fife in [64] eingeführt und wird u.a. in [64–67] verwendet. Während der Phasenumwandlung nahe des thermodynamischen Gleichgewichts, also z. B. bei langsamer Erstarrung, wie sie in den Simulationen dieser Thesis auftritt, haben die Phasen in einer Zelle das gleiche chemische Potential [68]. Daher kann die Differenz der Großkanonischen Potentiale zweier Phasen, welche die Fähigkeit eines Systems zur Phasenumwandlung beschreiben, als treibende Kraft in Phasenfeldsimulationen [36–38, 69–71] verwendet werden. Ein Vorteil der Verwendung des Großkanonischen Potentials als treibende Kraft ist die Möglichkeit, die Grenzflächenenergien und die Breite des diffusen Übergangsbereiches voneinander zu entkoppeln, da die Projektion der thermodynamischen Energien, statt der Energie selbst verwendet werden [37]. Weiterhin tritt bei der in [37] hergeleiteten Formulierung mit Hilfe des Großkanonischen Potentials keine Zusatzenergie im Grenzflächenbereich auf, welche die Ergebnisse verfälschen kann. Ein Überblick über die verschiedenen Phasenfeldmodelle ist von Caginalp und Xie [61], von Almgren [72] und von Sekerka [73] publiziert.

2.1.1. Multiphasen- und Multikomponenten-Modelle

Im Folgenden wird der Verbesserungsprozess der PFM im Hinblick auf die quantitative Korrektheit der Phasenfeldmodelle für die Simulation multiphasiger und -komponentiger Systeme rekapituliert. Zur Simulation von realen Werkstoffen sind thermodynamisch konsistente Multiphasen-Multikomponenten-Modelle (MP-MK-Modelle) und die Verwendung von realen thermodynamischen Daten notwendig. Herleitungen von derartigen Modellen, basierend auf den vorgestellten thermodynamischen Potentialen als treibende Kraft, werden in [64, 74–76] beschrieben. Thermodynamisch konsistent bedeutet in diesem Kontext beispielsweise, dass die Gleichgewichtswinkel in den Tripelpunkten, also den Berührpunkten dreier Phasen korrekt abgebildet werden. Ein Vergleich verschiedener in der Literatur veröffentlichter Modelle [56, 57] mit einem neu hergeleiteten Modell von Wheeler et al. ist in [75] publiziert. In der Arbeit von Tiaden et al. [77] wird eine Gegenüberstellung des binären Zweiphasenmodells von Wheeler et al. [57] zu dem von ihnen entwickelten Multiphasen-Ansatz mit Massendiffusion sowie die Äquivalenz im Fall von zwei Phasen und binären Legierungen gezeigt.

Andere Formulierungen von Multiphasen-Modellen sind von Steinbach et al. [78], von Garcke et al. [79] sowie von Nestler et al. [80] publiziert. Diese erlauben die Simulation der Interaktion von mehr als zwei Phasen miteinander, was in einer größeren Anzahl von Ordnungsparametern, in komplexeren Interaktionen und in einem höheren Rechenaufwand resultiert. Die komplexeren Interaktionen erfordern beispielsweise die Verwendung einer verbesserten Interpolationsfunktion zwischen den verschiedenen Eigenschaften der Phasen, wie sie in [81] vorgestellt wird.

Zur Simulation von Systemen mit mehr als zwei chemischen Komponenten und verschiedenen thermodynamischen Phasen sind MP-MK-Modelle z. B. in [35, 66, 82–84] veröffentlicht. Ein Vergleich eines von Garcke et al. vorgestellten Modells mit beliebig vielen Phasen und Komponenten mit den Ansätzen von [64, 85] sowie mit Modellen mit einem scharfen Phasenübergang ist in [82] gegeben. Darin wird die Äquivalenz für bestimmte Fälle gezeigt.

Ein thermodynamisch konsistentes MP-MK-Modell, mit der Verwendung von Grenzflächen-Anisotropie sowie kinetischer Anisotropie, ist von Nestler et al. in [66] veröffentlicht. Für dieses Modell werden außerdem Simulationsergebnisse einer dreidimensional, gerichtet erstarrten, ternären eutektischen Legierung gezeigt, bei denen sich die drei Festphasen in einer hexagonalen Struktur parallel zur Erstarrungsfront anordnen.

2.1.2. Kopplung mit thermodynamischen Datenbanken

Neben den vorgestellten Modellverbesserungen ermöglicht die Einbindung von Gibbs-Energien und Mobilitäten realer Werkstoffe in die PFM, welche in CALPHAD-Datenbanken (engl. Calculation of Phase Diagrams) gespeichert sind, eine höhere Genauigkeit der verwendeten Simulationsparameter [86, 87]. Dies erlaubt eine bessere Abbildung der in realen Materialien stattfindenden Prozesse.

Die Kopplung eines MP-MK-Modells mit thermodynamischen Datenbanken, unter Verwendung eines linearen Extrapolationsschemas, ist von Eiken (geb. Tiaden) et al. in [84] veröffentlicht. Mit Hilfe dieses Ansatzes werden die Diffusionsgleichungen von [68] und [83] in den vorgestellten Simulationen reproduziert.

Weitere Ansätze zur Kopplung von thermodynamischen CALPHAD-Datenbanken mit Phasenfeldmodellen sind in [88–97] publiziert. Die benötigten thermodynamischen Gibbs-Energien für eine Vielzahl verschiedener multikomponentiger Legierungen sind dazu unter anderem in [30, 31, 98–109] veröffentlicht. Beispiele für die Nutzung der Kopplungsansätze und der Datenbanken zur Simulation der Mikrostrukturentwicklung in realen Systemen mit der PFM sind in [110–112] gegeben. Die Koeffizienten, welche die Diffusion der chemischen Elemente in den Festphasen z. B. während der Erstarrung beschreiben, sind in CALPHAD-Mobilitätsdatenbanken gespeichert [113–115]. Die Kopplung von sowohl thermodynamischen, wie auch Mobilitätsdatenbanken mit der PFM ist in [116, 117] publiziert.

2.1.3. Weitere Modellverbesserungen

Eine Erhöhung der Anzahl der zu lösenden Evolutionsgleichungen in MP-MK-Modellen, in Verbindung mit komplexeren Modellen durch die Kopplung mit thermodynamischen Datenbanken in Gebieten, die repräsentative Volumenelemente abbilden, resultiert in einem erhöhten rechentechnischem Aufwand. Um diesen Aufwand mit den vorhandenen Rechnern bewältigen zu können, wurden verschiedene Modellverbesserungen für eine effizientere Berechnung der Evolutionsgleichungen vorgestellt.

Mathematische Modelloptimierungen zur Verringerung des Rechenaufwandes sind von Karma et al. [118, 119] publiziert. Durch diese Optimierungen wird das Verhältnis zwischen der Kapillarlänge und der Grenzflächenbreite verringert. Dies bedeutet, dass bei gleicher Kapillarlänge die Grenzflächenbreite erhöht werden kann und damit die notwendige Auflösung des Gebietes verringert wird. Der Einfluss größerer Grenzflächenbreiten aufgrund größerer Diskretisierungen auf die entstehenden Mikrostrukturen wird in [120–122] untersucht.

Aufgrund der Diskretisierung mit finiten Differenzen in einem kartesischen Gitter kann es zu einer unphysikalischen Anisotropie in der entstehenden Mikrostruktur kommen [123, 124]. Dieser Effekt tritt verstärkt bei Systemen mit steilen Gradienten, z. B. durch eine hohe Triebkraft, oder bei einer groben Gitterauflösung auf. Da eine feinere Diskretisierung in einem höheren Rechenaufwand resultiert, wird von [123] die Einführung einer Gegenanisotropie zum Ausgleich dieses Effektes vorgeschlagen. Diese muss allerdings für jedes System und jede Diskretisierung zunächst kalibriert werden.

Weiterhin wird bei der PFM durch die Einführung des diffusen Übergangsbereiches statt einer scharfen Grenzfläche ein künstlicher Massenfluss verursacht (engl. solute trapping effect). Dieser Effekt tritt vor allem bei stark unterschiedlichen Diffusionskonstanten zwischen den betrachteten Phasen auf und wird beispielsweise von Wheeler et al. in [56], von Boettinger et al. in [125] und von anderen Autoren in [126–128] untersucht. Zum Ausgleich dieses unphysikalischen, modell-intrinsischen Effektes kann ein sogenannter „anti-trapping-current“ im Modell hinzugefügt werden [120, 129–131]. Allerdings bedeutet diese Steigerung der Modellgenauigkeit einen höheren rechentechnischen Aufwand.

Bei der Berechnung von Multiphasen-Systemen, wie beispielsweise Großkornsystemen, wird im Allgemeinen jedem Korn ein eigener Ordnungsparameter zugeordnet. Die Speicherung und Berechnung der Interaktion aller Phasenfelder im gesamten Gebiet resultiert in einem hohen Speicher- und Rechenaufwand. Allerdings interagieren beispielsweise beim Kornwachstum nur eine relativ geringe Anzahl von Körnern jeweils direkt. Zur Ausnutzung dieses Zusammenhangs

haben Kim et al. in [132] eine Modellverbesserung vorgestellt, welche die Anzahl der zu speichernden Ordnungsparameter auf fünf Werte pro Zelle in 2D und auf sechs Werte in 3D reduziert, da nur die lokal auftretenden Phasen betrachtet werden. Varianten dieses Ansatzes sind ebenfalls in [133, 134] publiziert.

Für eine Vergrößerung der numerischen Zeitschrittweite können, neben der üblicherweise verwendeten expliziten Euler-Methode, implizite Schemata verwendet werden [135–143]. Semi-implizite Verfahren für Berechnungen mit der PFM werden von Vanherpe et al. in [144, 145] und von Kornhuber und Krause in [146] vorgestellt. Da diese Verfahren nur begrenzt parallelisierbar und damit für großskalige Berechnungen weniger gut geeignet sind, wird für die in dieser Arbeit gezeigten Simulationen ein explizites Euler-Verfahren angewandt.

Eine weitere Optimierung ist die Nutzung von lokal verfeinerten Rechennetzen (engl. Adaptive Mesh Refinement (AMR)) [147–152]. Ein Überblick über verschiedene AMR-Algorithmen ist von Provatas et al. in [153] gegeben. Da ähnlich wie bei impliziten Verfahren eine Parallelisierung mit MPI (Message Passing Interface) problematisch ist, wird dieser Ansatz für die Phasenfeldsimulationen in dieser Thesis nicht verwendet.

Weitere Optimierungsansätze basieren auf der Klassifizierung einzelner Zellen [154, 155] und der Speicherung von Gradienten, um die Anzahl der benötigten Rechenoperationen zu verringern.

2.2. Gerichtete Erstarrung

Die gerichtete Erstarrung beschreibt die Phasenumwandlung eines Systems vom flüssigen in den festen Zustand, bei der durch einen aufgeprägten Temperaturgradienten die Wachstumsrichtung und Erstarrungsgeschwindigkeit vorgegeben sind. Wie auch in [34] beschrieben, kann dieser Prozess mit Hilfe der Temperatur, der Konzentration und des Drucks kontrolliert werden. Die Phasenfeldmethode hat sich in den letzten Jahren, ergänzend zu Experimenten und zu analytischen Ansätzen, für die Untersuchung solcher Prozesse etabliert. Dabei wird in der PFM der Druck während der Erstarrung im Allgemeinen als konstant angenommen. Experimentell wird die gerichtete Erstarrung mit Hilfe eines dünnen Schmelzfilms zwischen zwei Glasplatten oder in Bridgman-Öfen durchgeführt.

Während einer gerichteten Erstarrung bildet sich die Mikrostruktur eines Werkstoffes in Abhängigkeit von den Prozessbedingungen und der chemischen Zusammensetzung der Schmelze aus. Dabei können unterschiedliche Umwandlungsprozesse wie dendritisches, eutektisches und peritektisches Wachstum oder auch spinodale Entmischung auftreten.

Da in dieser Arbeit die gerichtete Erstarrung ternärer eutektischer Legierungen insbesondere für das System Al-Ag-Cu untersucht wird, liegt der Fokus im Folgenden auf der eutektischen Erstarrung. Aufgrund ähnlicher physikalischer Prozesse bei dem Wachstum eutektischer Kolonien und Fingerstrukturen wird ebenfalls kurz die Entwicklung im Bereich dendritischen Wachstums rekapituliert. Eine Zusammenfassung von peritektischer Erstarrung ist in dem Übersichtsartikel von Akamatsu und Plapp [156] publiziert. Untersuchungen der spinodalen Entmischung werden in [157–162] durchgeführt.

Die Experimente mit dem System Al-Ag-Cu, die im Rahmen dieser Arbeit für die Validierung der Simulationen genutzt werden, wurden in der ARTEMIS-Anlage [163] des Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt e. V. in Köln durchgeführt. In dieser Art von Bridgman-Ofen wird die Schmelze zwischen zwei Heizern in einem Aerogeltiegel gerichtet erstarrt. Es findet keine Bewegung der Anlage oder des Tiegels statt, wodurch der Einfluss äußerer Störungen auf den Prozess verringert wird. Das transparente Tiegelmaterial ermöglicht die Beobachtung der Erstarrungsfront und somit die Messung der Erstarrungsgeschwindigkeit. Die Anlage kann so gesteuert werden, dass die Erstarrung sehr langsam (minimal erreicht: $0.08 \mu\text{m}/\text{s}$) und damit diffusionskontrolliert abläuft.

Im Folgenden wird zunächst auf verschiedene Formen dendritischen Wachstums mit einem und mehreren chemischen Elementen eingegangen. Anschließend wird der Stand der Forschung bei der Erstarrung multikomponentiger und multiphasiger Systeme direkt an eutektischen und in der Nähe von eutektischen Punkten vorgestellt.

2.2.1. Dendritisches Wachstum

Dendriten, abgeleitet vom griechischen Wort déndron (Baum), beschreiben verzweigte, baumartige Strukturen die entstehen, wenn Kristallisation in bevorzugten Kristallrichtungen auftritt, z. B. in erstarrten Schmelzen [34]. Ein Beispiel für einen in eine umgebende eutektische Matrix eingebetteten Dendriten ist für das System Al-Ag-Cu in Abb. 2.2 dargestellt. Die Abbildung zeigt ein Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront und stammt von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. in Köln, Deutschland. Die Probe ist mit einer Geschwindigkeit von $10 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von 2.5 K/mm erstarrt. In rot ist ein Dendriten sowie die direkt beeinflusste Mikrostruktur in seiner Umgebung hervorgehoben.

Dendriten entstehen aus einer sich verstärkenden Störung an einer mit Schmelze, Konzentration oder beidem übersättigten Erstarrungsfront [164]. Eine Übersicht über die Instabilitäten, die zum Ausformen von dendritischen Strukturen führen, ist in den Arbeiten von Langer [165, 166] und Kessler et al. [167] gegeben.

Eine erste mathematische Beschreibung der entstehen Strukturen, insbesondere der Erstarrungsgeschwindigkeit der Dendritenspitzen für isotherme Erstarrung, wurde von Ivantsov [168] im Jahr 1947 hergeleitet. Weiterführende mathematische Beschreibungen sind von Horvay und Cahn [169], Kurz und Fisher [170] und von Lipton et al. [171] (LGK-Modell) publiziert. Das sogenannte LGK-Modell [171] beschreibt den Zusammenhang zwischen der Wachstumsgeschwindigkeit, dem Radius an der Dendritenspitze, der Unterkühlung und den Konzentrationen in der Schmelze für solutales und thermisches Dendritenwachstum. Weitere Modelle, die u.a. schnelle Erstarrung beschreiben, sind z. B. von Lipton et al. [172] publiziert.

Im Zentrum der experimentellen Untersuchungen stehen insbesondere der Abstand der primären Dendritenarme, die Wachstumsgeschwindigkeit der Dendritenspitzen [173–176], der sekundäre Armabstand [177–179], die Radien der Dendritenspitzen [170, 180] und die Größe der Festkörper-Schmelze-Übergangszone (engl. mushy zone) [181, 182].

Ein häufig genutztes Beispielsystem für die Untersuchung dendritischer Strukturen ist das System Al-Cu aufgrund seiner mechanischen Eigenschaften, wie z. B. der Möglichkeit der Aushärtbarkeit, und seiner Gießbarkeit. Experimentelle und analytische Untersuchungen des

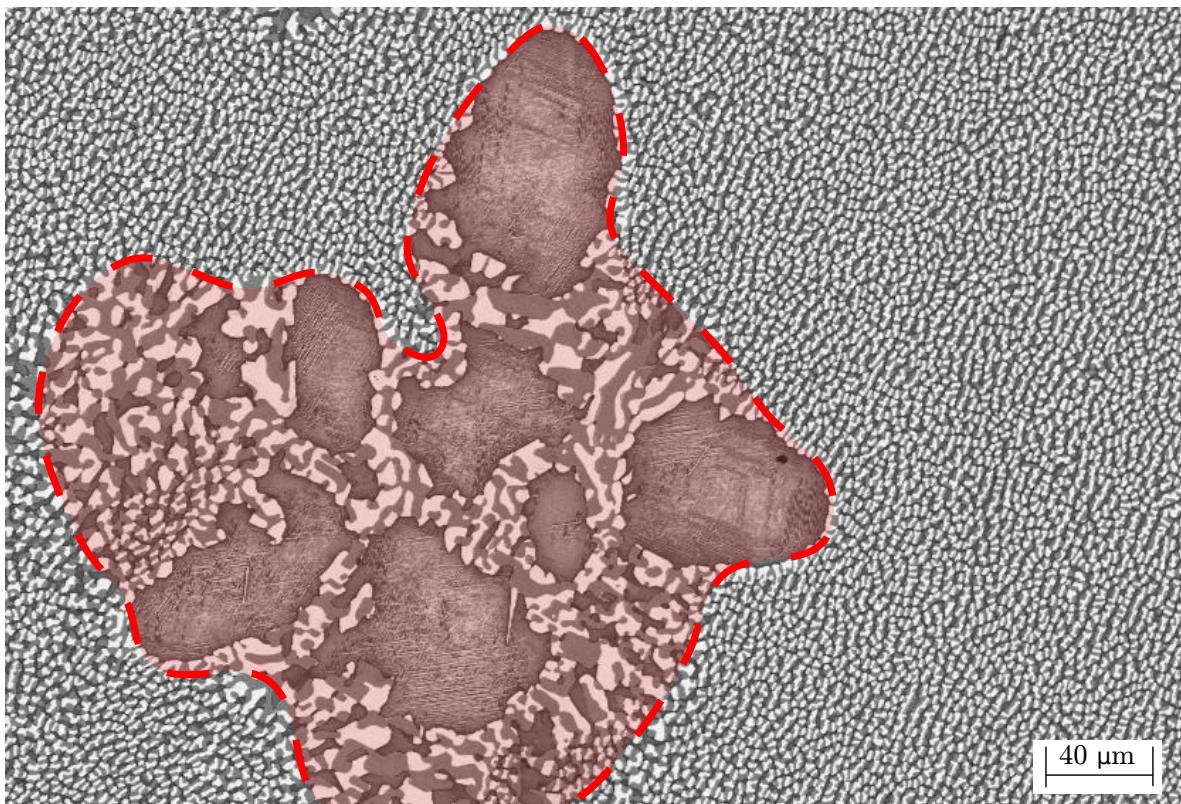


Abbildung 2.2.: Beispiel für ein gekoppeltes Wachstum von eutektischen und dendritischen Strukturen. In rot ist ein Dendrit sowie die direkt beeinflusste Mikrostruktur in seiner Umgebung in einem Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront, eingebettet in eine ternär eutektische Matrix dargestellt. Die Probe ist mit einer Geschwindigkeit von $10 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von 2.5 K/mm erstarrt. Das Bild stammt von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. in Köln, Deutschland.

Dendritenwachstums in Al-Cu-Legierungen werden unter anderem in den Arbeiten [183–188] durchgeführt.

Eine der ersten zweidimensionalen Phasenfeldsimulationen, die das thermische Dendritenwachstum beschreibt, wurde 1993 in [58] publiziert. Abhängig von der Modellierung der genutzten Anisotropie sowie der Frequenz und der Amplitude der aufgebrachten Rauschfunktion entwickeln sich bis zu drei Seitenarme. Das Wachstum von thermischen Dendriten, also das Entstehen von Spitzen oder Seitenarmen aus erstarrenden Keimen durch Schwankungen im Temperaturfeld wird mit der PFM in den Publikationen [58, 118, 119, 189–196] untersucht.

Ein rechentechnisch verbessertes Modell zur Simulation dendritischer Erstarrung reiner Materialien, welches mit Berechnungen für einen scharfen Übergang validiert wird, ist von Karma und Rappel in [118] publiziert. Dieses Modell wird in [191] zur Simulation dreidimensionaler Dendriten genutzt und ein quantitativer Vergleich mit Experimenten von Succinonitril wird in [119] durchgeführt.

Solutales Dendritenwachstum, das heißt das Entstehen von Spitzen oder Seitenarmen aus erstarrenden Keimen durch Schwankungen im Konzentrationsfeld der Schmelze wird z. B. in [83, 91, 120, 149, 197–210] untersucht.

Simulationen der Kombination von thermisch- und konzentrationsgetriebenem Wachstum von Dendriten mit der PFM sind erstmals in [211] publiziert. Diese Art des Wachstums wird auch von Loginova et al. in [212] und von Emmerich et al. in [213] untersucht. In der Arbeit von Loginova et al. wird gezeigt, dass für kleine Unterkühlungen und viele Keime ein isothermer Ansatz, also konzentrationsgetriebenes Wachstum, ausreichend ist. Für höhere Unterkühlungen und weniger Nuklei wird eine Berechnung der Konzentrations- und der Temperaturevolution empfohlen.

2.2.2. Eutektische Erstarrung

Wie in Abb. 2.2 gezeigt, können während der Erstarrung in mehrkomponentigen Legierungen neben Dendriten auch eutektische Strukturen entstehen. Nach [19] und [34] ist eine eutektische Erstarrung einer Flüssigkeit definiert als das gleichzeitige Ausscheiden von zwei oder mehr Phasen, während einer eutektischen Reaktion $L \leftrightarrow \alpha + \beta$, bei einer konstanten Temperatur. Das Wort eutektisch stammt aus dem griechischen und bedeutet „einfach schmelzend“. Die Bezeichnung ist darauf zurückzuführen, dass die Schmelztemperatur an einem eutektischen Punkt im Allgemeinen niedriger als die Schmelzpunkte der beteiligten Einzelkomponenten ist.

Zweidimensionale Erstarrung von Eutektika

Beim zweidimensionalen Wachstum binärer Eutektika treten verschiedene Instabilitäten auf. Diese sind z. B. eine Verkipfung der Lamellenorientierung (engl. Tilt) oder Oszillationen der Lamellenbreiten. Ein Wachstum wird als verkippt bezeichnet, wenn eine dauerhafte, stabile Abweichung zwischen der vom Temperaturgradienten vorgegebenen Wachstumsrichtung und den Fest-Fest-Grenzflächen auftritt. Theoretische Ansätze zur Beschreibung der Stabilität in binären eutektischen Systemen werden in [22, 164, 214–216] hergeleitet. In der Arbeit von Kassner et al. [217] wird gekipptes Wachstum analytisch untersucht. Das Auftreten von Oszillationen der Phasenbreiten wird von Kassner et al. in [218] und von Karma und Sarkissian in [219] analysiert. Weitere theoretische Ansätze zur Erklärung der Instabilitätsphänomene sind auch in [22, 217, 220–224] veröffentlicht.

Experimentell wird eine quasi-zweidimensionale gerichtete Erstarrung mit Hilfe eines dünnen Schmelzfilms zwischen zwei Glasplatten realisiert. Da die Verwendung von optisch transparenten, organischen Systemen eine In-situ-Untersuchung der zweidimensionalen gerichteten Erstarrung ermöglicht, werden sie in den Arbeiten von Witusiewicz et al. [225, 226] und der Arbeitsgruppe von Prof. Faivre und Prof. Akamatsu [224, 227–235] eingesetzt. Mit diesen Experimenten wird der Einfluss der Prozessbedingungen auf die entstehenden lamellaren Strukturen und gekipptes Wachstum studiert.

Weitere Dünnschichtexperimente für ternäre Legierungen werden von Rex et al. in [236] durchgeführt. Dabei wird deutlich, dass eine Zusammensetzung, die sich leicht von derjenigen am

eutektischen Punkt unterscheidet, zu vielfältigen Mustern während der Mikrostrukturevolution des Systems In-Bi-Sn führt.

Zur Modellierung der quasi-zweidimensionalen Experimente in Simulationen kann die Phasenfeldmethode verwendet werden. Eine Untersuchung binärer eutektischer Systeme wird dabei in [59, 80, 152, 237–239] durchgeführt. Es zeigt sich, dass die Simulationen in [59, 80, 237] die Charakteristiken des analytischen Jackson-Hunt-Ansatzes [240] ebenso wie die Experimente abbilden. Abhängig von der Breite der Lamellen entstehen unterschiedliche Instabilitäten (z. B. Oszillationen), die auch in korrespondierenden Experimenten auftreten. Gekipptes Wachstum in binären Legierungen tritt in den Simulationen von Ghosh und verschiedenen Mitautoren auf [238, 239, 241]. Diese Form von Wachstum wird verursacht durch Anisotropie in den Grenzflächenenergien, da verkipptes Wachstum energetisch günstiger sein kann als die vom Temperaturgradienten vorgegebene Wachstumsrichtung.

Für ternäre Eutektika kann diese Art von Instabilität bedingt durch weitere Mechanismen auftreten. Eine Verkippung durch Konzentrationsflüsse, die für bestimmte lamellare Anordnungen auftreten können, wird von Apel et al. in [242] für das System Al-Ag-Cu mit der PFM gezeigt. Hötzter et al. [243] finden in Simulationen einen Zusammenhang zwischen den Grenzflächenenergien und dem Verkippungswinkel für bestimmte Verhältnisse der Fest-Fest- und der Fest-Flüssig-Grenzflächenenergien für ein idealisiertes, ternäres eutektisches System, welches ebenfalls in Kapitel 7 für Simulationen genutzt wird.

Dreidimensionale Erstarrung von Eutektika

Im Gegensatz zur zweidimensionalen Erstarrung können sich während der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika in 3D eine Vielzahl unterschiedlicher Muster in Ebenen senkrecht zur Erstarringsrichtung ausbilden. Basierend auf geometrischen Überlegungen postulieren Ruggiero und Rutter [244] die Existenz fünf verschiedener idealisierter Muster in ternären Eutektika, welche graphisch von Lewis et al. in [245] dargestellt werden. Die Vielfalt der auftretenden Muster bei der gerichteten Erstarrung realer ternärer Eutektika ist, wie von Cooksey und Hellawell [14] gezeigt, allerdings deutlich größer. Beispiele der unterschiedlichen Muster für eine Reihe von metallischen Legierungen sind in [14] dargestellt.

Die entstehenden Muster sind von den Prozess- und Erstarringsbedingungen abhängig. Dies wird durch den Vergleich experimenteller Ergebnisse für das System Al-Ag-Cu von Böyük et al. [246], Genau und Ratke [15] und Zhou und Froyen [247] deutlich, bei denen sich unterschiedliche Muster in der Mikrostruktur entwickeln. Die in diesen Arbeiten publizierten Schliffbilder zeigen Mikrostrukturen von quasi-isotherm erstarrtem [247] sowie gerichtet erstarrtem ternären eutektischen Al-Ag-Cu mit [246] und ohne Abschrecken [15].

Zusätzlich zu der Anordnung der Fasern und Lamellen in einer eutektischen Struktur sind deren Abstände von der Erstarringsgeschwindigkeit abhängig. Experimentelle Untersuchungen des Zusammenhangs für verschiedene Multikomponentensysteme werden in [248–252] vorgestellt. Analytisch lässt sich diese Beziehung mit der Jackson-Hunt-Theorie beschreiben [240, 253].

Ein häufig untersuchtes Beispielsystem für die Musterbildung in ternären Eutektika ist das System Al-Ag-Cu. In diesem System nimmt die Löslichkeit von Ag in der Al-Phase unterhalb des ternären eutektischen Punktes stark ab (sog. Solubility-Shift), wie von Witusiewicz et al. in

[30, 31] thermodynamisch und von Genau und Ratke in [15] experimentell nachgewiesen wird. Durch diese Löslichkeitsverschiebung verändern sich die bei der Erstarrung gebildeten Muster und Anordnungen der Phasen, die in Schliffbildern bei Raumtemperatur beobachtet werden [254]. Um diesen Effekt zu untersuchen, wird die Mikrostruktur während der Erstarrung abgeschreckt, was diffusionsbasierte Umlagerungsprozesse durch die Löslichkeitsänderung unterdrückt. Entsprechende Untersuchungen der Mikrostruktur sind in [24, 254] publiziert.

Aufgrund der unterschiedlichen Dichten der Elemente in der Schmelze ist das System Al-Ag-Cu weiterhin interessant für die Untersuchung des Einflusses von Gravitation auf die entstehenden Muster [23]. Es wird vermutet, dass sich schwerkraftinduzierte Konvektion [26, 27] ausbildet. Die gerichtete Erstarrung von Al-Ag-Cu soll daher auf der internationalen Raumstation ISS im Rahmen des SETA-Programms bei geringer Schwerkraft untersucht [28, 29] werden. Der Effekt von Konvektion auf die Zusammensetzung der Schmelze während eines univarianten eutektischen Wachstums wird in [254] erforscht.

Eine Charakterisierung der kristallographischen Orientierung der entstehenden Festphasen mit Elektronenrückstreuung (engl. Electron Backscatter Diffraction) und der räumlichen Anordnung der Fasern mit Nächste-Nachbarn-Statistiken wird von Genau und Ratke in [20] durchgeführt. Weitere statistische Untersuchungen des Systems Al-Ag-Cu werden von Dennstedt et al. in [16] mit Formfaktoren und in [17] mit Polar-Plots durchgeführt. Eine 3D-Präsentation der entstehenden Mikrostruktur durch Synchrotron-Tomographie ist in [18, 155] publiziert und mit separierten Phasen in Abb. 2.3 dargestellt. Die Al_2Cu -Phase ist in dunkelgrau, die Ag_2Al -Phase in weiß und die Al-Matrix in schwarz abgebildet. Das Experiment wurde von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. in Köln, Deutschland durchgeführt und die 3D-Tomographie an der European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) in Grenoble, Frankreich aufgenommen.

Eine Nutzung von monochromatischer Strahlung für die Tomographie von ternärem eutektischem Al-Ag-Cu ist notwendig, um die hohe Strahlungsabsorption oberhalb der Ag_K -Absorptionskante (25.513 keV) zu umgehen und mit größeren Proben arbeiten zu können. Zudem wurde die Absorption der Al-Phase, die unterschiedliche Ag-Gehalte aufweisen kann, damit so gering gehalten, dass die sichere Unterscheidung der drei Festphasen möglich wurde [18].

Weitere experimentell untersuchte ternäre eutektische Systeme sind unter anderem Nb-Al-Ni [5], Al-Si-Ni [25] und Sn-Ag-Zn [255]. Die Ausbildung der entstehenden Muster bei verschiedenen ternär eutektischen Zusammensetzungen der chemischen Elemente Bi, In, Sn, Pb und Cd werden von Ruggiero und Rutter in [244, 256–260] analysiert.

Zur Modellierung der während der gerichteten Erstarrung in Bridgman-Öfen entstehenden Strukturen in Experimenten mit der Phasenfeldmethode werden zwei unterschiedliche Ansätze verwendet. Im ersten Ansatz wird die dreidimensionale Mikrostruktur mit 2D-Simulationen angenähert. Dabei wird der Mechanismus der Nukleation genutzt, um die Fasern und Lamellen in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront zu reproduzieren. Der Vorteil dieser Methode ist der signifikant geringere Rechenaufwand im Vergleich zur Auflösung der vollen 3D-Mikrostruktur. Zweidimensionale Phasenfeldsimulationen von Experimenten mit Bridgman-Öfen werden u.a. in [261–266] durchgeführt. Dabei kann, wie in [263, 264] gezeigt, eine optische Ähnlichkeit mit experimentellen Schliffbildern parallel zur Wachstumsfront erreicht werden.

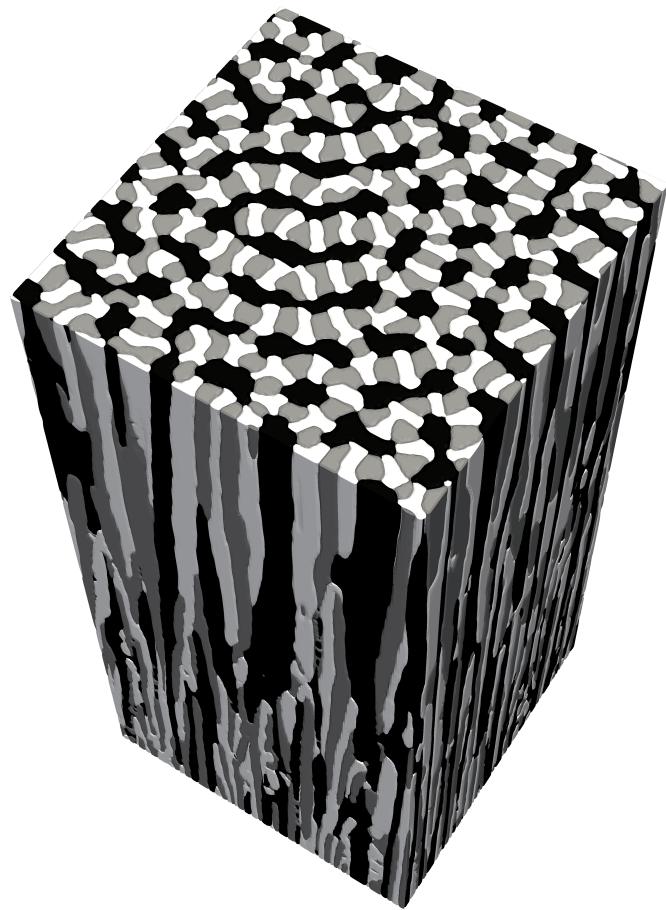


Abbildung 2.3.: Darstellung der dreidimensionalen, in drei Phasen separierten, Mikrostruktur von gerichtet erstarrtem ternär eutektischem Al-Ag-Cu. Die drei Festphasen Al_2Cu , Ag_2Al und Al sind grau, weiß und schwarz abgebildet. Das Experiment stammt von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. in Köln, Deutschland. Die 3D Tomographie wurde an der European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) in Grenoble, Frankreich aufgenommen.

Zur Untersuchung der komplexen räumlichen Wechselwirkung von Fasern und Lamellen ist allerdings eine Simulation der 3D-Mikrostruktur notwendig. Ähnlich wie bei den Instabilitäten in 2D treten auch während der gerichteten Erstarrung in 3D verschiedene Instabilitäten auf. Die Stabilität von lamellaren Strukturen wird von Parisi und Koautoren mit der PFM in [223, 267, 268] analysiert. Dabei wird in binären Eutektika beobachtet, dass ein Musterumschlag mit einer Verringerung der durchschnittlichen Front-Temperatur einhergeht. Eine Veränderung der Muster von labyrinthartigen Strukturen der zwei erstarrenden Festphasen zu ausgerichteten Lamellen kann auch mit einem zur Wachstumsrichtung verkippten Temperaturgradienten erreicht werden, wie in [269] gezeigt.

Das dreidimensionale Wachstum eines idealisierten ternären eutektischen Systems wird von Choudhury et al. in [270] mit Hilfe des Phasenfeldmodells von Nestler et al. [66] simuliert.

Dabei bilden sich unterschiedliche Muster in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront aus, ähnlich wie von [244] vorhergesagt.

Weitere Arbeiten zur dreidimensionalen gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika mit der PFM, auf denen auch Teile dieser Arbeit beruhen, sind in [38, 69–71, 155, 243, 271] publiziert. Dabei werden sowohl ideale [71], idealisierte [243, 272] wie auch reale Legierungen (Al-Ag-Cu) [38, 69–71, 155, 243, 271] simuliert. Zusammenfassungen des Stands der Forschung zu dreidimensionalen Phasenfeldsimulationen von eutektischen System sind von Lewis et al. in [273] und von Akamatsu und Plapp in [156] veröffentlicht.

2.2.3. Zellstrukturen und eutektische Kolonien

In Multikomponenten-Systemen können während einer gerichteten Erstarrung neben Dendriten und Eutektika mit planarer Wachstumsfront auch Zellstrukturen und eutektische Kolonien entstehen. Diese Art von Wachstum wird begünstigt, wenn sich die Zusammensetzung der Schmelze von der am eutektischen Punkt unterscheidet. Da die Verteilung der Komponenten nicht der Gleichgewichtszusammensetzung der drei Festphasen entspricht, können sich eine oder mehrere Komponenten vor der Erstarrungsfront anreichern. Ähnlich wie bei solutalem Dendritenwachstum können dann lokale Unterschiede im Konzentrationsfeld oder Krümmungen der Erstarrungsfront zu sich verstärkenden Instabilitäten führen. Dieser Effekt wird durch höhere Geschwindigkeiten und eine somit verringerte Diffusion verstärkt.

Ein Beispiel für eutektische Kolonien, die bei der gerichteten Erstarrung von Al-Ag-Cu entstehen, ist in dem Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront in Abb. 2.4 abgebildet. Zur Unterscheidung der einzelnen geordneten Bereiche sind blaue gestrichelte Linien hinzugefügt worden. Auf der rechten Seite der Abbildung ist eine eutektische Kolonie vergrößert dargestellt, bei der sich in der Mitte ausgerichtete, ternär eutektische Strukturen bilden. Die Schmelze ist mit einer Geschwindigkeit von $8.7 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Gradienten von $2.8 \text{ K}/\text{mm}$ erstarrt. Das Experiment und die Auswertung wurden von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V., Köln, Deutschland durchgeführt.

Eine Instabilität, wie von Mullins und Sekerka beschrieben [164, 274–276], führt zu einem verstärktem Wachstum einzelner Bereiche der Erstarrungsfront [277–280], was zu unregelmäßigen Mustern führt. Das Entstehen und die Entwicklung von Zellstrukturen wird mit der PFM von Losert et al. [281] und von Lan und Mautoren [150, 282, 283] analysiert. Für Systeme mit mehr als zwei chemischen Elementen können sich bei nicht-eutektischer Zusammensetzung der Schmelze eutektische Kolonien als Überlagerung von eutektischer und zellularer Erstarrung ausbilden, wie in [284–286] experimentell gezeigt.

Eine analytische Beschreibung des Umschlags von lamellarem Wachstum zu eutektischen Kolonien wird von Himemiya in [287] vorgestellt. Abhängig von der Erstarrungsgeschwindigkeit und der Zusammensetzung der Schmelze können somit Vorhersagen gemacht werden, wann welches Wachstumsmuster auftritt. Weitere theoretische Stabilitätsbetrachtungen für eutektische Kolonien, analog zur Mullins-Sekerka-Instabilität, werden in [288] angestellt. Außerdem werden in [279] korrespondierende experimentelle Ergebnisse des Systems $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ gezeigt.

Simulativ wird das Wachstum eutektischer Kolonien mit der PFM in [289–291] studiert. Da zur Auflösung der Instabilitäten große Gebiete sowohl in Wachstumsrichtung wie auch quer

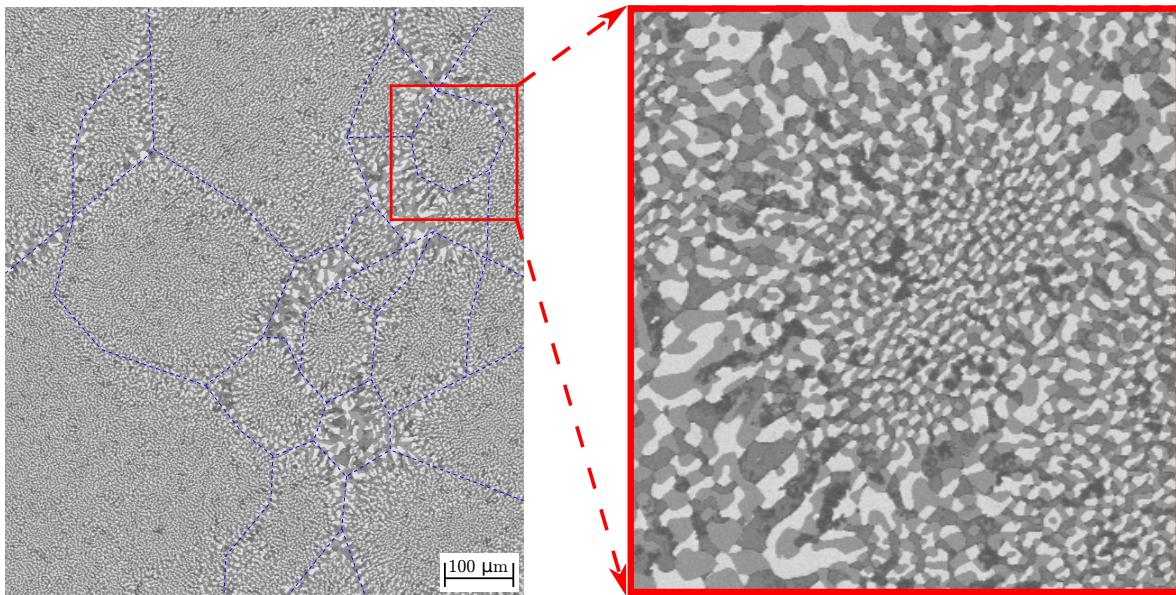


Abbildung 2.4.: Experimentelles Schliffbild einer gerichtet erstarrten Al-Ag-Cu-Legierung parallel zur Erstarrungsfront. Die Probe ist mit einer Geschwindigkeit von $8.7 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Gradienten von $2.8 \text{ K}/\text{mm}$ erstarrt. Es bilden sich einzelne geordnete Bereiche aus, die mit blauen gestrichelten Linien hervorgehoben sind. Die drei Festphasen Ag_2Al , Al_2Cu und Al sind weiß, grau und schwarz abgebildet. Das Experiment und die Auswertung wurden von Dr. A. Dennstedt am Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. in Köln, Deutschland durchgeführt.

dazu benötigt werden, sind diese 2D-Rechnungen mit Nukleation, anstelle einer Auflösung der vollen dreidimensionalen Mikrostruktur durchgeführt worden.

Eine besondere Form von eutektischen Kolonien sind spiralförmige Dendriten. Bei diesem Muster drehen sich die Dendritenspitzen, die aus zwei Festphasen bestehen, als konische Spiralen umeinander. Experimentell wird dieses Muster von Akamatsu et al. in [292] untersucht und von Pusztai et al. [293] sowie Ratkai et al. in [294] mit der Phasenfeldmethode simuliert.

2.3. Methoden zur Validierung

Für den Vergleich von Experimenten und Simulationen sowie zur Validierung mit analytischen Ansätzen haben sich verschiedene Methoden etabliert. Im Folgenden werden, ähnlich wie in [34], einige analytische Theorien für die Validierung von Simulation eutektischer Erstarrung mit der PFM präsentiert. Daran anschließend werden statistische Methoden zur Auswertung von Experimenten und Simulationen vorgestellt.

In Experimenten zeigt sich, dass der Abstand von Lamellen und Fasern mit der Erstarrungsgeschwindigkeit korreliert [23, 223, 228, 231, 248–252, 268, 295–299].

Nach der Gibbs-Thomson-Gleichung erfolgt die Erstarrung, selbst bei einer eutektischen

Zusammensetzung, unterhalb der eutektischen Temperatur. Der Zusammenhang zwischen dem lamellaren Abstand λ , der Wachstumsgeschwindigkeit der Front v und der Unterkühlung unter die eutektische Temperatur ΔT kann mit der Jackson-Hunt-Gleichung [240] $\Delta T = A v \lambda + B/\lambda$ beschrieben werden. Dabei sind A und B materialspezifische Konstanten. Basierend auf dieser Analytik untersuchen Hunt et al. [214] und Langer [215] die Stabilität von lamellarem eutektischen Wachstum. Dabei wird ein Kriterium definiert für welche Werte von λ , die größer als das globale Minimum der Kurve λ_{JH} sind, die Lamellen stabil wachsen. Die minimale Unterkühlung, die vom System angestrebt wird, folgt der Beziehung $\Delta T = 2\sqrt{ABv}$ bei $\lambda = \lambda_{JH}$. Ein Überblick über die Theorie ist im Buch *Solidification* von Dantzig und Rappaz [300] dargestellt. Verschiedene Erweiterungen der binären Jackson-Hunt-Theorie sind in [301–304] publiziert. Für ternäre eutektische Systeme existieren Ansätze in [253, 270, 305].

Mit Hilfe von 2D-Simulationen wird in [59, 80, 237] gezeigt, dass die theoretisch hergeleitete Beziehung für ΔT auch für die PFM gültig ist. Eine quantitative Übereinstimmung von Phasenfeldsimulationen mit einem Freie-Energie-Modell [66] wird für das zweidimensionale Wachstum ternärer Eutektika in [270] gezeigt. In der Arbeit [71], auf der Teile dieser Thesis basieren, wird die Gültigkeit der Jackson-Hunt-Beziehung auch für die gerichtete Erstarrung ternärer eutektischer Systeme in 3D gezeigt. Ein theoretischer Ansatz für beliebig viele Komponenten wird von Catalina et al. in [306] vorgestellt.

Neben der Validierung mit analytischen Ansätzen erlaubt der Vergleich von Simulationen und Experimenten eine gegenseitige Überprüfung auf Korrektheit. Zur Quantifizierung der lokalen Anordnung verschiedener Phasen haben sich Nächste-Nachbarn-Statistiken etabliert. Die Anwendung für die gerichtete Erstarrung ternärer Eutektika wird in [15, 21, 38, 69, 233, 307, 308] aufgezeigt. Die Klassifizierung der Form einzelner Fasern kann mittels Formfaktoren realisiert werden [16, 272]. Dabei wird eine Metrik definiert, welche die Abweichung einer Phase in Schnitten senkrecht zur Wachstumsrichtung von einer Kreisform beschreibt. Die räumliche Anordnung der Fasern und ihrer Form kann beispielsweise mit Pol-Plots [17, 20] oder mit einer Hauptkomponentenanalyse, basierend auf Zweipunktkorrelationen [70, 271, 309, 310] (siehe Abschnitt 5.4), bestimmt werden. Andere verwendete Methoden zur Quantifizierung der Mikrostruktur sind die Grenzlinienlänge, die Tripelpunktdichte und die Phasenfraktionen.

3. Phasenfeldmodell

Im Rahmen dieser Arbeit wird zur Untersuchung der gerichteten Erstarrung ternärer eutektischer Systeme ein thermodynamisch konsistentes Phasenfeldmodell basierend auf [36–38, 66, 311] verwendet. In den Simulationen wird ein Gebiet $\Omega \subset \mathbb{R}^d$ mit der Dimension $d \in \{1, 2, 3\}$ betrachtet. Das Phasenfeld $\phi : \Omega \times \mathbb{R} \rightarrow [0, 1]$ beschreibt die kontinuierliche Funktion $\phi(\mathbf{x}, t)$, welche die lokalen Phasenfraktionen an der Position $\mathbf{x} \in \Omega$ zum Zeitpunkt $t \in \mathbb{R}$ bzw. den thermodynamischen Zustand einer Phase beschreibt. Für die jeweiligen Phasen im Gebiet werden einzelne Phasenfelder $\phi_{\hat{\alpha}}$ mit den Indizes $\hat{\alpha}, \hat{\beta}, \dots \in [1, N]$ und $N \in \mathbb{N}$ als Anzahl der betrachteten Phasenfelder definiert. Diese Phasenfelder sind als Vektor auf einem Simplex $\Phi \in \Delta^N, \forall \mathbf{x}, t$ definiert mit

$$\Delta^N = \left\{ \mathbf{v} \in [0, 1]^N \mid \sum_{\hat{\alpha}=1}^N v_{\hat{\alpha}} = 1 \right\}. \quad (3.1)$$

Die Grenze zwischen zwei Phasen wird als diffuser Übergang modelliert. In einem Bereich, in dem nur eine Phase mit dem Index $\hat{\alpha}$ aktiv ist, also außerhalb der diffusen Übergänge, ist $\phi_{\hat{\alpha}}(\mathbf{x}, t) = 1$ und die anderen Phasen sind null. Im Bereich der diffusen Übergänge zwischen zwei Phasen mit den Indizes $\hat{\alpha}$ und $\hat{\beta}$ ist $\phi_{\hat{\alpha}}(\mathbf{x}, t) + \phi_{\hat{\beta}}(\mathbf{x}, t) = 1$ und die anderen Phasen sind null. Entsprechendes gilt für den Übergangsbereich von drei und mehr Phasen.

Diese Aufteilung des Gebietes Ω in die Bereiche verschiedener Phasen und die Modellierung der Grenzflächen als diffuse Übergänge sind in Abb. 3.1 schematisch dargestellt. Die drei Phasen α, β und γ (rot, grün und blau) sind durch diffuse Übergänge getrennt. Die Phasenfeldwerte zwischen β und γ sind beispielhaft im rechten Teil von Abb. 3.1 dargestellt. Da in diesem Beispiel ein β - γ -Übergang betrachtet wird, ist $\phi_{\alpha} = 0$.

3.1. Evolutionsgleichungen der Phasenfeldparameter

Nach [36, 37] wird zur Modellierung der Gesamtenergie im System das Funktional des Großkanonischen Potentials Ψ der Form

$$\Psi(\Phi, \mu, T) = \int_{\Omega} \left(\varepsilon a(\Phi, \nabla \Phi) + \frac{1}{\varepsilon} \omega(\Phi) \right) + \psi(\Phi, \mu, T) d\Omega \quad (3.2)$$

verwendet, welches vom Vektor der Phasenfelder Φ , dem Vektor der chemischen Potentiale $\mu(\mathbf{c}, T)$ sowie der Temperatur T abhängt. Der Skalierungsfaktor ε korreliert mit der Breite der diffusen Übergangsbereiche. Die chemischen Potentiale sind abhängig von dem Konzentrationsvektor $\mathbf{c} \in \Delta^K$, der auf einem Simplex

$$\Delta^K = \left\{ \mathbf{v} \in [0, 1]^K \mid \sum_{i=1}^K v_i = 1 \right\}. \quad (3.3)$$

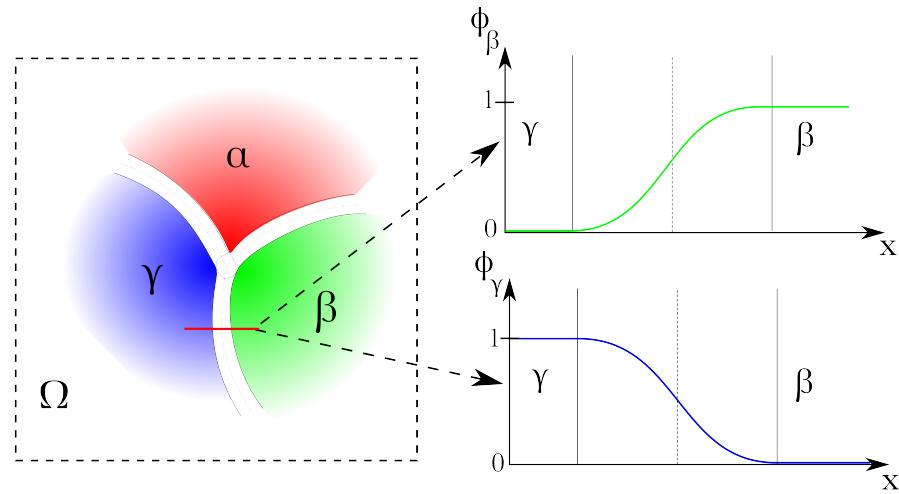


Abbildung 3.1.: Beschreibung der Aufteilung des Gebietes Ω in Bereiche verschiedener Phasen (links) und die Modellierung der Grenzflächen als diffuse Übergänge mit den Phasenfeldern ϕ_β und ϕ_γ (rechts).

mit der Anzahl der chemischen Komponenten K im betrachteten System definiert ist.

Zur Modellierung des diffusen Überganges zwischen zwei und mehr Phasen werden die Gradientenergiedichte $a(\boldsymbol{\phi}, \nabla \boldsymbol{\phi})$, ein Potentialterm $\omega(\boldsymbol{\phi})$ und die Großkanonischen Potentiale $\psi(\boldsymbol{\phi}, \boldsymbol{\mu}, T)$ verwendet. Wie in Abb. 3.2 schematisch für den Übergang zwischen zwei Phasen dargestellt, bewirkt $a(\boldsymbol{\phi}, \nabla \boldsymbol{\phi})$ eine Verbreiterung des Übergangsbereichs, $\omega(\boldsymbol{\phi})$ eine Verringerung der Breite und $\psi(\boldsymbol{\phi}, \boldsymbol{\mu}, T)$ wirkt als treibende Kraft für die Phasenumwandlung.

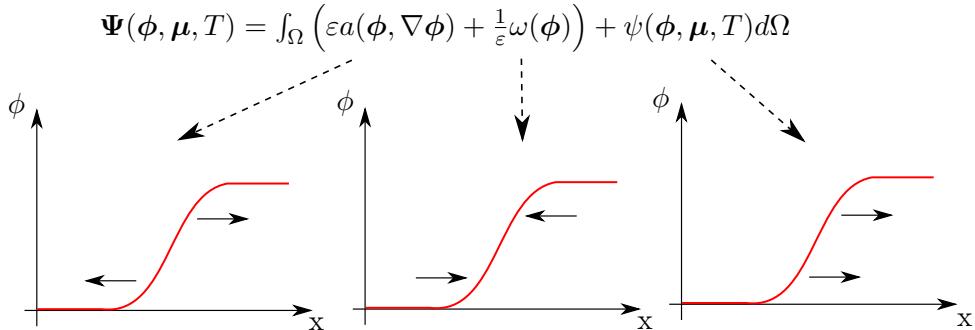


Abbildung 3.2.: Schematische Darstellung des Einflusses von $a(\boldsymbol{\phi}, \nabla \boldsymbol{\phi})$, $\omega(\boldsymbol{\phi})$ und $\psi(\boldsymbol{\phi}, \boldsymbol{\mu}, T)$ auf das Phasenfeldprofil für den Übergang zwischen zwei Phasen, basierend auf einer Darstellung in [134].

Die Gradientenergiedichte $a(\boldsymbol{\phi}, \nabla \boldsymbol{\phi})$ für ein isotropes System ist modelliert als

$$a(\boldsymbol{\phi}, \nabla \boldsymbol{\phi}) = \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \sum_{\substack{\hat{\beta}=1 \\ (\hat{\alpha}<\hat{\beta})}}^N \gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}} |\vec{q}_{\hat{\alpha}\hat{\beta}}|^2, \quad (3.4)$$

mit der Grenzflächenenergiedichte $\gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}}$ und dem generalisierten Gradientenvektor $\vec{q}_{\hat{\alpha}\hat{\beta}} = \phi_{\hat{\alpha}}\nabla\phi_{\hat{\beta}} - \phi_{\hat{\beta}}\nabla\phi_{\hat{\alpha}}$.

Für den Potentialterm $\omega(\Phi)$ wird ein Doppelwandpotential mit

$$\omega(\Phi) = \begin{cases} \frac{16}{\pi^2} \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \sum_{\hat{\beta}=1}^N \gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}} \phi_{\hat{\alpha}}\phi_{\hat{\beta}} + \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \sum_{\hat{\beta}=1}^N \sum_{\hat{\delta}=1}^N \gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}\hat{\delta}} \phi_{\hat{\alpha}}\phi_{\hat{\beta}}\phi_{\hat{\delta}} & , \Phi \in \Delta^N \\ \infty & , \Phi \notin \Delta^N \end{cases} \quad (3.5)$$

verwendet. Der höhere Ordnungsterm $\gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}\hat{\delta}}$ in Gl. (3.5) wird eingeführt, um die Entstehung von unphysikalischen Drittphasen an binären Phasenübergängen zu unterdrücken [312].

In Abb. 3.3 ist das verwendete Doppelwandpotential $\omega(\Phi)$ über einem 3- und 4-Phasen-Simplex in baryzentrischen Koordinaten dargestellt. Der 4-Phasen-Simplex entspricht dem Potential in ternären eutektischen Systemen mit drei Festphasen und der Schmelze. Die Farben zeigen die Höhe des Potentials entsprechend des Farbbalkens rechts in der Abbildung. Es wird deutlich, dass der Wert des Potentials in Richtung der Eckpunkte des Simplex abnimmt. Die Minima in den Ecken des Simplex begünstigen eine Verkleinerung des diffusen Übergangsbereiches, wie auch in Abb. 3.2 schematisch dargestellt.

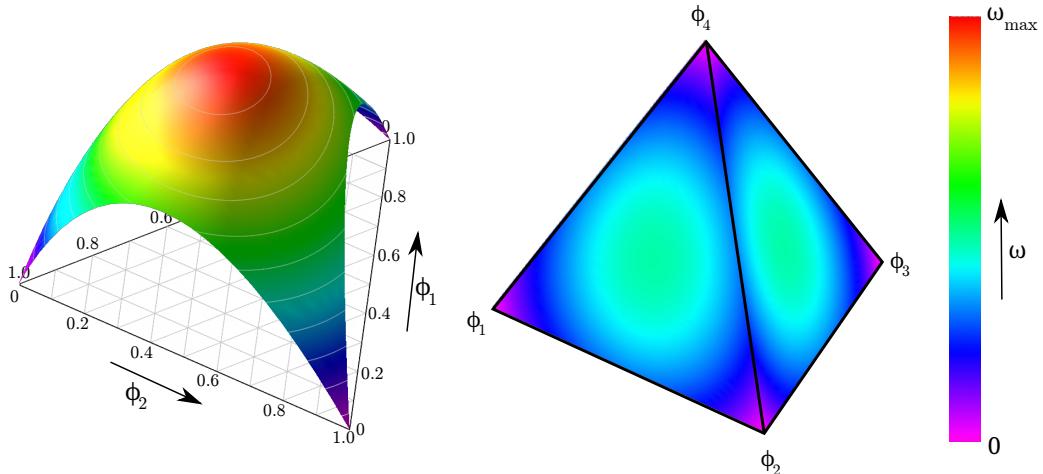


Abbildung 3.3.: Darstellung des Doppelwandpotentials $\omega(\Phi)$ über einem 3- und 4-Phasen-Simplex in baryzentrischen Koordinaten. Die Farben verdeutlichen den Wert des Potentials entsprechend des Farbbalken rechts.

Als treibende Kraft zur Phasenumwandlung wird die Differenz der Großkanonischen Potentiale $\Delta\psi(\Phi, \mu, T)$ verwendet. Diese wird aus freien Energien f oder Gibbs-Energien g hergeleitet, die experimentell bestimmt werden können und in CALPHAD-Datenbanken [313, 314] publiziert sind. Für die freie Energie gilt

$$f = g - pV \quad (3.6)$$

und mit der Annahme eines konstanten Drucks p und Volumens V im System gilt für den Unterschied in den Energien zweier Phasen, dass

$$\Delta f = \Delta g \quad (3.7)$$

ist. Die Differenz der Großkanonischen Potentiale zweier Phasen lässt sich somit durch

$$\Delta\psi = \psi_\alpha - \psi_\beta = f_\alpha - f_\beta + \sum_{i=1}^{K-1} \mu_i c_i^\alpha - \sum_{i=1}^{K-1} \mu_i c_i^\beta = g_\alpha - g_\beta + \sum_{i=1}^{K-1} \mu_i c_i^\alpha - \sum_{i=1}^{K-1} \mu_i c_i^\beta \quad (3.8)$$

berechnen. Für ein System mit zwei Komponenten und zwei Phasen ist der Zusammenhang zwischen $\Delta\psi$, den Gibbs-Energien g_α und g_β , den Konzentrationen c_1^α und c_1^β sowie dem chemischen Potential μ_1 für eine feste Temperatur T_1 in Abb. 3.4 schematisch dargestellt. Die Gibbs-Energie der Phase α ist als rote Kurve dargestellt und die von β in grün. Das chemische Potential wird als Steigung der beiden parallelen Tangenten berechnet.

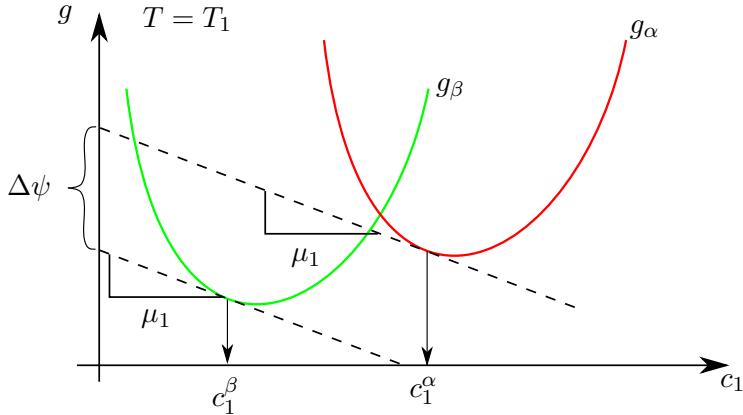


Abbildung 3.4.: Schematische Darstellung des Zusammenhangs zwischen $\Delta\psi$, den Gibbs-Energien g_α und g_β , den Konzentrationen c_1^α und c_1^β sowie dem chemischen Potential μ_1 für eine feste Temperatur T_1 .

Für ternäre Systeme ergeben sich die chemischen Potentiale μ_1 und μ_2 als Steigungen paralleler Ebenen über dem Konzentrationssimplex. Da in dieser Arbeit die Erstarrung ternärer Eutektika simuliert wird, ist der Zusammenhang zwischen der Differenz der Großkanonischen Potentiale $\Delta\psi$, den Gibbs-Energien g_α , g_β und den Konzentrationen c^α und c^β für eine feste Temperatur T_1 in Abb. 3.5 schematisch dargestellt. Die Gibbs-Energien der Phase α und β sind korrespondierend zu Abb. 3.4 in rot und grün dargestellt.

Die Gibbs-Energien diverser physikalischer Systeme sind nach [313, 314] in thermodynamischen CALPHAD-Datenbanken in der Form

$$g_\alpha = \sum_{i=1}^K c_i^{\hat{\alpha}} {}^0 g_i^{\hat{\alpha}} + RT \sum_{i=1}^K c_i^{\hat{\alpha}} \ln(c_i^{\hat{\alpha}}) + g_{\hat{\alpha}}^{XS} \quad (3.9)$$

publiziert, mit der Gibbs-Energie der reinen Komponenten in der betrachteten Phase ${}^0 g_i^{\hat{\alpha}}$, dem idealen Mischungsanteil $RT \sum_{i=1}^K c_i^{\hat{\alpha}} \ln(c_i^{\hat{\alpha}})$, abhängig von der idealen Gaskonstante R , sowie dem Überschussanteil $g_{\hat{\alpha}}^{XS}$. Diese Formel gilt, wenn keine Untergitterstrukturen vorhanden sind. Dabei wird ${}^0 g_i^{\hat{\alpha}}$ häufig durch einen Ansatz der Form

$${}^0 g_i^{\hat{\alpha}} = \tilde{A}_i^{\hat{\alpha}} + \tilde{B}_i^{\hat{\alpha}} T + \tilde{C}_i^{\hat{\alpha}} T \ln(T) + \tilde{D}_i^{\hat{\alpha}} T^2 + \tilde{E}_i^{\hat{\alpha}} T^3 + \tilde{F}_i^{\hat{\alpha}} T^{-1} \quad (3.10)$$

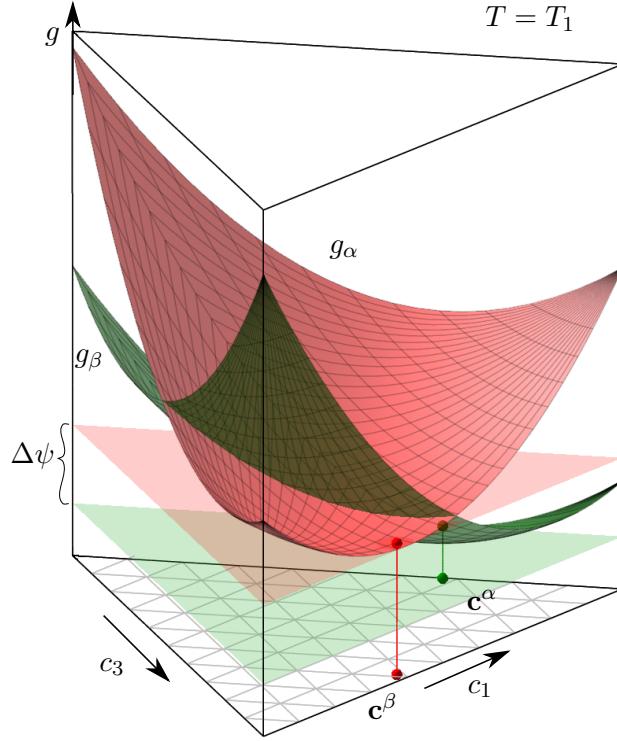


Abbildung 3.5.: Abbildung des Zusammenhangs zwischen der Differenz der Großkanonischen Potentiale $\Delta\psi$, den Gibbs-Energien g_α und g_β und den Konzentrationen \mathbf{c}^α und \mathbf{c}^β für eine feste Temperatur T_1 in einem ternären System.

mit den Approximationskonstanten $\tilde{A}_i^{\hat{\alpha}} - \tilde{F}_i^{\hat{\alpha}}$ beschrieben.

Da zur Berechnung der Großkanonischen Potentiale die Berechnung der chemischen Potentiale notwendig ist und hierfür wiederum die Berechnung von $\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(g_{\hat{\alpha}})$, wird die inverse Abbildung von $g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}})$ benötigt. Aufgrund der Unstetigkeit der Logarithmus-Funktion \ln und der Polynome in dem Überschuss-Anteil der Gibbs-Energie ist diese Invertierung nicht eindeutig.

Daher wird, wie in [97] beschrieben, ein parabolischer Näherungsansatz für die Gibbs-Energie einer Phase $\hat{\alpha}$ mit

$$g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}, T) = \sum_{i=1}^K \left(A_i^{\hat{\alpha}}(T)(c_i^{\hat{\alpha}})^2 + B_i^{\hat{\alpha}}(T)c_i^{\hat{\alpha}} \right) + C^{\hat{\alpha}}(T) \quad (3.11)$$

verwendet, was für ein ternäres System in einem Ansatz der Form

$$g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}, T) = A_1^{\hat{\alpha}}(T)(c_1^{\hat{\alpha}})^2 + A_2^{\hat{\alpha}}(T)(c_2^{\hat{\alpha}})^2 + A_3^{\hat{\alpha}}(T)(c_3^{\hat{\alpha}})^2 + B_1^{\hat{\alpha}}(T)c_1^{\hat{\alpha}} + B_2^{\hat{\alpha}}(T)c_2^{\hat{\alpha}} + B_3^{\hat{\alpha}}(T)c_3^{\hat{\alpha}} + C^{\hat{\alpha}}(T) \quad (3.12)$$

mit dem Approximationssparametern $A_i^{\hat{\alpha}}(T)$, $B_i^{\hat{\alpha}}(T)$ und $C^{\hat{\alpha}}(T)$ resultiert. Mit Hilfe der Massenerhaltung ($c_3^{\hat{\alpha}} = 1 - c_1^{\hat{\alpha}} - c_2^{\hat{\alpha}}$) lässt sich der Ansatz in der Matrix-Vektor-Form nach [38] als

$$g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}) = \langle \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}, \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}(T) \mathbf{c}^{\hat{\alpha}} \rangle + \langle \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}, \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}(T) \rangle + X_{\hat{\alpha}}(T) \quad (3.13)$$

mit

$$\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}(T) = \begin{pmatrix} (A_1^{\hat{\alpha}}(T) + A_3^{\hat{\alpha}}(T)) & A_3^{\hat{\alpha}}(T) \\ A_3^{\hat{\alpha}}(T) & (A_2^{\hat{\alpha}}(T) + A_3^{\hat{\alpha}}(T)) \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

$$\boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}(T) = \begin{pmatrix} B_1^{\hat{\alpha}}(T) - 2A_3^{\hat{\alpha}}(T) - B_3^{\hat{\alpha}}(T) \\ B_2^{\hat{\alpha}}(T) - 2A_3^{\hat{\alpha}}(T) - B_3^{\hat{\alpha}}(T) \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

$$X_{\hat{\alpha}}(T) = C^{\hat{\alpha}}(T) + A_3^{\hat{\alpha}}(T) + B_3^{\hat{\alpha}}(T) \quad (3.16)$$

und mit dem Skalarprodukt $\langle \bullet, \bullet \rangle$ ausdrücken.

Das chemische Potential ergibt sich daraus als

$$\boldsymbol{\mu}_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}, T) = \frac{\partial g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}})}{\partial \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}} = 2\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}\mathbf{c}^{\hat{\alpha}} + \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}, \quad (3.17)$$

die Konzentrationen der Komponenten in einer Phase als

$$\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}_{\hat{\alpha}}, T) = \frac{1}{2}\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu}_{\hat{\alpha}} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \quad (3.18)$$

sowie die Ableitung der Konzentrationen in einer Phase nach dem chemischen Potential als

$$\frac{\partial \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu})}{\partial \boldsymbol{\mu}_{\hat{\alpha}}} = \frac{1}{2}\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}. \quad (3.19)$$

Unterschiedliche chemische Potentiale für aneinandergrenzende Phasen resultieren in einem Diffusionprozess der Konzentrationen, der zu einer Angleichung der Potentiale führt. Daher kann das chemische Potential nach [36, 300] zu

$$\boldsymbol{\mu} = \begin{pmatrix} \mu_1 \\ \mu_2 \\ \vdots \\ \mu_K \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mu_1^\alpha \\ \mu_2^\alpha \\ \vdots \\ \mu_K^\alpha \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mu_1^\beta \\ \mu_2^\beta \\ \vdots \\ \mu_K^\beta \end{pmatrix} = \dots = \begin{pmatrix} \mu_1^N \\ \mu_2^N \\ \vdots \\ \mu_K^N \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

reduziert werden.

Das Großkanonische Potential für einen Ordnungsparameter α ist somit definiert als

$$\psi_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T) = g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T), T) - \sum_{i=1}^{K-1} \mu_i c_i^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T) = g_{\hat{\alpha}}(\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T), T) - \langle \boldsymbol{\mu}, \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T) \rangle, \quad (3.21)$$

was sich zu

$$\begin{aligned} \psi_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}) &= \langle \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}), \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}) \rangle + \langle \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}), \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \rangle + X_{\hat{\alpha}} - \langle \boldsymbol{\mu}, \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}) \rangle \\ &= \left\langle \frac{1}{2}\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}} \frac{1}{2}\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}) \right\rangle + \left\langle \frac{1}{2}\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \right\rangle \\ &\quad - \left\langle \frac{1}{2}\boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\mu} \right\rangle + X_{\hat{\alpha}} \\ &= \frac{1}{4} \left\langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \right\rangle + \frac{1}{2} \left\langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \right\rangle - \frac{1}{2} \left\langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\mu} \right\rangle + X_{\hat{\alpha}} \\ &= -\frac{1}{4} \left\langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}), \boldsymbol{\mu} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \right\rangle + X_{\hat{\alpha}} \\ &= -\frac{1}{4} \left(\langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}\boldsymbol{\mu}, \boldsymbol{\mu} \rangle - 2 \langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}\boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}, \boldsymbol{\mu} \rangle + \langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}\boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}, \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \rangle \right) + X_{\hat{\alpha}} \end{aligned} \quad (3.22)$$

umschreiben lässt und zusammengefasst

$$\begin{aligned}\psi_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}) &= \langle \boldsymbol{\mu}, \boldsymbol{\Upsilon}_{\hat{\alpha}} \boldsymbol{\mu} \rangle + \langle \boldsymbol{\mu}, \boldsymbol{v} \rangle + Y_{\hat{\alpha}} \\ &= \langle \boldsymbol{\mu}, \boldsymbol{\Upsilon}_{\hat{\alpha}} \boldsymbol{\mu} + \boldsymbol{v} \rangle + Y_{\hat{\alpha}},\end{aligned}\quad (3.23)$$

mit

$$\boldsymbol{\Upsilon}_{\hat{\alpha}}(T) = -\frac{1}{4} \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1} \quad (3.24)$$

$$\boldsymbol{v}_{\hat{\alpha}}(T) = \frac{1}{2} \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1} \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \quad (3.25)$$

$$Y_{\hat{\alpha}}(T) = -\frac{1}{4} \langle \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1} \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}, \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \rangle + X_{\hat{\alpha}} = -\frac{1}{2} \langle \boldsymbol{v}_{\hat{\alpha}}, \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}} \rangle + X_{\hat{\alpha}} \quad (3.26)$$

ergibt.

Das gesamte Großkanonische Potential

$$\psi(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T) = \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \left(g_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T), T) - \sum_{i=1}^{K-1} \mu_i c_i^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T) \right) h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}) \quad (3.27)$$

in Gl. (3.2) ergibt dementsprechend in Vektor-Matrix-Schreibweise

$$\psi(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T) = \sum_{\hat{\alpha}=1}^N (\langle \boldsymbol{\mu}, \boldsymbol{\Upsilon}_{\hat{\alpha}}(T) \boldsymbol{\mu} + \boldsymbol{v}_{\hat{\alpha}}(T) \rangle + Y_{\hat{\alpha}}(T)) h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}) \quad (3.28)$$

mit der Interpolationsfunktion $h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi})$. Eine mögliche Interpolationsfunktion für Multiphasensysteme wurde in [81] als

$$h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}) = \frac{\phi_{\hat{\alpha}}^2}{\sum_{\hat{\beta}=1}^N \phi_{\hat{\beta}}^2} \quad (3.29)$$

vorgestellt.

Zur Herleitung der Evolutionsgleichung und der Minimierung des Funktionals des Großkanonischen Potentials (Gl. (3.2)) wird eine Variationsableitung nach Allen und Cahn durchgeführt:

$$\tau \epsilon \frac{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}{\partial t} = - \frac{\delta \Psi(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T)}{\delta \phi_{\hat{\alpha}}}. \quad (3.30)$$

Daraus ergibt sich die Evolutionsgleichung für die N Phasenfelder

$$\tau \epsilon \frac{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}{\partial t} = - \left(\epsilon \left(\frac{\partial a(\boldsymbol{\Phi}, \nabla \boldsymbol{\Phi})}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} - \left\langle \nabla, \frac{\partial a(\boldsymbol{\Phi}, \nabla \boldsymbol{\Phi})}{\partial \nabla \phi_{\hat{\alpha}}} \right\rangle \right) + \frac{1}{\epsilon} \frac{\partial \omega(\boldsymbol{\Phi})}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} + \frac{\partial \psi(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T)}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} - \lambda \right) \quad (3.31)$$

mit dem kinetischen Koeffizienten τ und dem Lagrange-Multiplikator

$$\lambda = \frac{1}{N} \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \epsilon \left(\frac{\partial a(\boldsymbol{\Phi}, \nabla \boldsymbol{\Phi})}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} - \left\langle \nabla, \frac{\partial a(\boldsymbol{\Phi}, \nabla \boldsymbol{\Phi})}{\partial \nabla \phi_{\hat{\alpha}}} \right\rangle \right) + \frac{1}{\epsilon} \frac{\partial \omega(\boldsymbol{\Phi})}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} + \frac{\partial \psi(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T)}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} \quad (3.32)$$

zur Sicherstellung, dass $\sum_{\hat{\alpha}=1}^N \frac{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}{\partial t} = 0$ in Gl. (3.31) erfüllt ist.

Der kinetische Koeffizient τ ist definiert als

$$\tau = \frac{\sum_{\hat{\alpha}=1}^N \sum_{\hat{\beta}=1}^N \tau_{\hat{\alpha}\hat{\beta}} \phi_{\hat{\alpha}} \phi_{\hat{\beta}}}{\sum_{\hat{\alpha}=1}^N \sum_{\substack{\hat{\beta}=1 \\ (\hat{\alpha}<\hat{\beta})}}^N \phi_{\hat{\alpha}} \phi_{\hat{\beta}}} \quad (3.33)$$

und $\tau_{\hat{\alpha}\hat{\beta}}$ berechnet sich nach [37] als

$$\tau_{\hat{\alpha}\hat{\beta}} = \varepsilon (\mathbf{c}^{\hat{\beta}} - \mathbf{c}^{\hat{\alpha}})^T \begin{bmatrix} D_{AA}^{\hat{\beta}} \frac{\partial c_A^{\hat{\beta}}}{\partial \mu_A} & D_{AB}^{\hat{\beta}} \frac{\partial c_A^{\hat{\beta}}}{\partial \mu_B} \\ D_{BA}^{\hat{\beta}} \frac{\partial c_B^{\hat{\beta}}}{\partial \mu_A} & D_{BB}^{\hat{\beta}} \frac{\partial c_B^{\hat{\beta}}}{\partial \mu_B} \end{bmatrix}^{-1} (\mathbf{c}^{\hat{\beta}} - \mathbf{c}^{\hat{\alpha}})(\tilde{M} + \tilde{F}) \quad (3.34)$$

mit den tabellarisierten Werten \tilde{M} und \tilde{F} und den Diffusionskoeffizienten $D_{ij}^{\hat{\beta}}$ der Komponenten A und B . Für die verwendete Interpolationsfunktion (Gl. (3.29)) gilt $\tilde{M} + \tilde{F} = 0.30714522$.

3.2. Evolutionsgleichungen der chemischen Potentiale

Für die Berechnung des Erstarrungsverhaltens multikomponentiger Legierungen werden neben den Evolutionsgleichungen für die N Phasenfelder zusätzlich die Evolutionsgleichungen für die $K - 1$ chemischen Potentiale, die sich unter Ausnutzung der Massenerhaltung ergeben, berechnet.

Aus den Fick'schen Gesetzen ergibt sich

$$\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial t} = \langle \nabla, \mathbf{D} \nabla \mathbf{c} \rangle \quad (3.35)$$

mit dem Skalarprodukt $\langle \bullet, \bullet \rangle$, der interpolierten Diffusionsmatrix \mathbf{D} und den interpolierten Konzentrationen

$$\mathbf{c}(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T) = \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T) h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}). \quad (3.36)$$

Gleichung 3.35 lässt sich durch die Verwendung der Mobilitäten \mathbf{M} in Abhängigkeit der chemischen Potentiale als

$$\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial t} = \langle \nabla, \mathbf{M}(\boldsymbol{\Phi}, T) \nabla \boldsymbol{\mu} \rangle \quad (3.37)$$

umschreiben. Die Mobilität ist definiert als

$$\mathbf{M}(\boldsymbol{\Phi}, \boldsymbol{\mu}, T) = \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \mathbf{D}^{\hat{\alpha}} \frac{\partial c^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T)}{\partial \boldsymbol{\mu}} h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}) \quad (3.38)$$

in Abhängigkeit von der Diffusionsmatrix $\mathbf{D}^{\hat{\alpha}}$ der betrachteten Phase $\hat{\alpha}$.

Unter Verwendung des vollständigen Differentials von \mathbf{c} mit

$$\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial t} = \left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial \boldsymbol{\mu}} \right) \Big|_{T, \Phi \text{ konst.}} \frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t} + \left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial \Phi} \right) \Big|_{T, \boldsymbol{\mu} \text{ konst.}} \frac{\partial \Phi}{\partial t} + \left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial T} \right) \Big|_{\boldsymbol{\mu}, \Phi \text{ konst.}} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (3.39)$$

lässt sich daraus die Evolutiongleichung für $\boldsymbol{\mu}$ herleiten als

$$\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t} = \left[\left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial \boldsymbol{\mu}} \right) \Big|_{T, \Phi \text{ konst.}} \right]^{-1} \left(\langle \nabla, \mathbf{M}(\Phi, T) \nabla \boldsymbol{\mu} \rangle - \left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial \Phi} \right) \Big|_{T, \boldsymbol{\mu} \text{ konst.}} \frac{\partial \Phi}{\partial t} - \left(\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial T} \right) \Big|_{\boldsymbol{\mu}, \Phi \text{ konst.}} \frac{\partial T}{\partial t} \right). \quad (3.40)$$

Da bei der Phasenfeldmethode der Übergangsbereich zwischen den Phasen künstlich vergrößert wird, entstehen unphysikalische Massenflüsse in den Grenzflächen [120, 129]. Dieser Effekt tritt insbesondere bei ungleichen Diffusionskonstanten in den Phasen auf, wie beispielsweise an einer Erstarrungsfront. Um diesen Effekt auszugleichen wird, ein sogenannter „anti-trapping-current“ \mathbf{J}_{at} zur Evolutionsgleichung der chemischen Potentiale hinzugefügt, der in [36, 37] hergeleitet wurde. Dieser „anti-trapping-current“ ist definiert als

$$\mathbf{J}_{at} = \frac{\pi \epsilon}{4} \sum_{\substack{\hat{\alpha}=1 \\ (\hat{\alpha} \neq liq)}}^N \frac{h_{\hat{\alpha}}(\Phi) h_{liq}(\Phi)}{\sqrt{\Phi_{\hat{\alpha}} \Phi_{liq}}} \frac{\partial \Phi_{\hat{\alpha}}}{\partial t} \left(\left\langle \frac{\nabla \Phi_{\hat{\alpha}}}{|\nabla \Phi_{\hat{\alpha}}|}, \frac{\nabla \Phi_{liq}}{|\nabla \Phi_{liq}|} \right\rangle \right) \left((\mathbf{c}_{liq}(\boldsymbol{\mu}) - \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu})) \otimes \frac{\nabla \Phi_{\hat{\alpha}}}{|\nabla \Phi_{\hat{\alpha}}|} \right), \quad (3.41)$$

mit dem Ordnungsparameter der Schmelze Φ_{liq} .

Nach dem Einsetzen von Gl. (3.41) in Gl. (3.40) ergibt sich die korrigierte Evolutiongleichung von $\boldsymbol{\mu}$ als

$$\begin{aligned} \frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t} &= \left[\sum_{\hat{\alpha}=1}^N h_{\hat{\alpha}}(\Phi) \left(\frac{\partial \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T)}{\partial \boldsymbol{\mu}} \right) \right]^{-1} \\ &\quad \left(\langle \nabla, \mathbf{M}(\Phi, \boldsymbol{\mu}, T) \nabla \boldsymbol{\mu} - \mathbf{J}_{at}(\Phi, \boldsymbol{\mu}, T) \rangle \right. \\ &\quad \left. - \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T) \frac{\partial h_{\hat{\alpha}}(\Phi)}{\partial t} - \sum_{\alpha=1}^N h_{\hat{\alpha}}(\Phi) \left(\frac{\partial \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T)}{\partial T} \right) \frac{\partial T}{\partial t} \right). \end{aligned} \quad (3.42)$$

Für die Berechnung der Konzentrationen $\mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu}, T)$ sowie die Ableitungen nach den chemischen Potentialen werden die Gibbs-Energien, wie in Gl. 3.11 vorgestellt, verwendet. Da nur die Evolution der chemischen Potentiale berechnet wird und die Konzentrationen aus diesen abgeleitet werden, kann es zu einer Verletzung der Massenerhaltung kommen, wenn die Konstanten $A_i^{\hat{\alpha}}$ und $B_i^{\hat{\alpha}}$ in Gl. 3.11 temperaturabhängig modelliert sind. Durch eine Veränderung der Parameter $A_i^{\hat{\alpha}}$ und $B_i^{\hat{\alpha}}$ und somit der Steigungen der Gibbs-Energien, ergeben sich andere Konzentrationen für die gleichen chemischen Potentiale und somit eine Veränderung der Masse.

Eine Möglichkeit diesen Effekt auszugleichen, ist es, bei einer Veränderung der Steigung der Gibbs-Energien die Konzentrationen zu erhalten und daraus korrigierte chemische Potentiale zu berechnen. Da bei den im Rahmen dieser Arbeit modellierten Systemen die Steigungen der Gibbs-Energien temperaturunabhängig modelliert sind, ist diese rechenaufwendige Korrektur nicht notwendig.

Insgesamt wird für die Berechnung der Erstarrung eines ternären eutektischen Systems mit drei Festphasen und der Schmelze ein gekoppelter Satz von $N = 4$ Phasenfeldgleichungen (Gl. (3.31)) und $K - 1 = 2$ Evolutionsgleichungen der chemischen Potentiale (Gl. (3.42)) berechnet. Die partiellen, nichtlinearen Differentialgleichungen werden mit finiten Differenzen räumlich diskretisiert und die zeitliche Entwicklung mit der expliziten Euler-Methode berechnet. Die Diskretisierung der Gleichungen in das Multiphysikframework Pace3D [134, 315–323] ist in [324] publiziert und Optimierungen bei der Implementierung in das massiv-parallele Framework WALBERLA¹ [325] sowie die Parallelisierung sind in [155] veröffentlicht.

3.3. Physikalische Modelloptimierungen

Die Diffusion der Wärme bzw. Temperatur läuft in Metallen im Allgemeinen um Größenordnungen schneller ab als die Diffusion von Masse. Daher wird in dem Modell ein sogenannter Eingefrorener-Temperatur-Ansatz (engl. frozen temperature approach) [289, 326] mit einem analytischen Temperaturgradienten G verwendet, der zu einer Evolutionsgleichung für die Temperatur T mit

$$\frac{\partial T}{\partial t} = -Gv \quad (3.43)$$

ergibt. Der Gradient hat eine konstante Geschwindigkeit $v = \frac{\partial z}{\partial t}$ in die Wachstumsrichtung z , womit sich für die gewöhnliche lineare Differentialgleichungen eine Lösung der Form

$$T = T_0 + G(z - z_0 - vt) \quad (3.44)$$

finden. Dabei dienen die Basistemperatur T_0 und die Basishöhe z_0 der eindeutigen Definition des Temperaturfeldes.

Die Temperaturabhängigkeit in Gl. (3.12) wird als linear angenommen. Daraus ergeben sich die Approximationskonstanten zu

$$A_1^{\hat{\alpha}}(T) = a_{11}^{\hat{\alpha}}T + a_{12}^{\hat{\alpha}} \quad B_1^{\hat{\alpha}}(T) = b_{11}^{\hat{\alpha}}T + b_{12}^{\hat{\alpha}} \quad (3.45)$$

$$A_2^{\hat{\alpha}}(T) = a_{21}^{\hat{\alpha}}T + a_{22}^{\hat{\alpha}} \quad B_2^{\hat{\alpha}}(T) = b_{21}^{\hat{\alpha}}T + b_{22}^{\hat{\alpha}} \quad (3.46)$$

$$A_3^{\hat{\alpha}}(T) = a_{31}^{\hat{\alpha}}T + a_{32}^{\hat{\alpha}} \quad B_3^{\hat{\alpha}}(T) = b_{31}^{\hat{\alpha}}T + b_{32}^{\hat{\alpha}} \quad (3.47)$$

$$C^{\hat{\alpha}}(T) = c_1^{\hat{\alpha}}T + c_2^{\hat{\alpha}}. \quad (3.48)$$

Mit Hilfe dieses Ansatzes und Gl. (3.18) lässt sich der Term $\frac{\partial c^{\hat{\alpha}}(\mu, T)}{\partial T}$ in Gl. (3.42) in Abhängigkeit von den chemischen Potentialen berechnen. Dabei wird ausgenutzt, dass $\frac{\partial \mu_{\hat{\alpha}}}{\partial T}$ für die

¹www.walberla.net

Berechnung von $\frac{\partial c^{\hat{\alpha}}(\mu, T)}{\partial T}$ in Gl. (3.42) nicht temperaturabhängig ist. Es gilt

$$\frac{\partial \mathbf{c}^{\hat{\alpha}}(\mu, T)}{\partial T} = \frac{\partial \frac{1}{2} \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}(\boldsymbol{\mu}_{\hat{\alpha}} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}})}{\partial T} = \frac{1}{2} \frac{\partial \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}}{\partial T}(\boldsymbol{\mu}_{\hat{\alpha}} - \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}) - \frac{1}{2} \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1} \frac{\partial \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}}{\partial T}, \quad (3.49)$$

mit

$$\frac{\partial \boldsymbol{\Xi}_{\hat{\alpha}}^{-1}}{\partial T} = \frac{1}{K_{\hat{\alpha}}} \begin{pmatrix} a_{21}^{\hat{\alpha}} + a_{31}^{\hat{\alpha}} & -a_{31}^{\hat{\alpha}} \\ -a_{31}^{\hat{\alpha}} & a_{11}^{\hat{\alpha}} + a_{31}^{\hat{\alpha}} \end{pmatrix} - \frac{k_{\hat{\alpha}}}{K_{\hat{\alpha}}^2} \begin{pmatrix} A_2^{\hat{\alpha}}(T) + A_3^{\hat{\alpha}}(T) & -A_3^{\hat{\alpha}}(T) \\ -A_3^{\hat{\alpha}}(T) & A_1^{\hat{\alpha}}(T) + A_3^{\hat{\alpha}}(T) \end{pmatrix} \quad (3.50)$$

und

$$\frac{\partial \boldsymbol{\xi}_{\hat{\alpha}}}{\partial T} = \begin{pmatrix} b_{11}^{\hat{\alpha}} - 2a_{31}^{\hat{\alpha}} - b_{31}^{\hat{\alpha}} \\ b_{21}^{\hat{\alpha}} - 2a_{31}^{\hat{\alpha}} - b_{31}^{\hat{\alpha}} \end{pmatrix}. \quad (3.51)$$

Hierfür werden die Abkürzungen

$$K_{\hat{\alpha}} = A_1^{\hat{\alpha}}(T)A_2^{\hat{\alpha}}(T) + A_1^{\hat{\alpha}}(T)A_3^{\hat{\alpha}}(T) + A_2^{\hat{\alpha}}(T)A_3^{\hat{\alpha}}(T) \quad (3.52)$$

und

$$k_{\hat{\alpha}} = a_{11}^{\hat{\alpha}}A_2^{\hat{\alpha}}(T) + a_{21}^{\hat{\alpha}}A_1^{\hat{\alpha}}(T) + a_{11}^{\hat{\alpha}}A_3^{\hat{\alpha}}(T) + a_{31}^{\hat{\alpha}}A_1^{\hat{\alpha}}(T) + a_{21}^{\hat{\alpha}}A_3^{\hat{\alpha}}(T) + a_{31}^{\hat{\alpha}}A_2^{\hat{\alpha}}(T) \quad (3.53)$$

eingeführt.

Weiterhin ist die Massendiffusion in den Festphasen um Größenordnungen kleiner als die Massendiffusion in der Schmelze [197, 290]. Daher wird die Festphasenmikrostrukturevolution in dem verwendeten Modell nicht betrachtet.

Es wird angenommen, dass die Verteilung der chemischen Elemente in der Schmelze durch Diffusionsprozesse verursacht wird. Für die Péclet-Zahl, die das Verhältnis von advektiven zu diffusiven Flüssen angibt, gilt

$$Pe = \frac{Lv}{D} \approx \frac{20 \cdot 10^{-6} m \cdot 10^{-6} m/s}{10^{-9} m^2/s} = 2 \cdot 10^{-2}, \quad (3.54)$$

mit der charakteristischen Länge L für ternäre Eutektika, einer typischen Erstarrungsgeschwindigkeit v und einer typischen Massendiffusionskonstante D . Die Grenzflächenenergien sind als isotrop angenommen und die Mikrostruktur entwickelt sich aus initial gesetzten Keimen.

4. Simulationsaufbau

Im Rahmen dieser Arbeit wird die gerichtete Erstarrung ternärer eutektischer Systeme mit der Phasenfeldmethode untersucht. Dazu wird der in Abb. 4.1 schematisch gezeigte Simulationsaufbau verwendet, bei dem drei Festphasen in ein mit Schmelze gefülltes Gebiet erstarrten.

Initial ist der untere Teil des Gebietes mit festen Nuklei gefüllt. Für die Simulationen, bei denen die freie Mikrostrukturevolution untersucht wird, bestehen diese Nuklei aus einer zufällig gesetzten Voronoi-Struktur, welche den vom Phasendiagramm vorhergesagten Anteilen der drei Festphasen entspricht. Im Gegensatz dazu werden für die Untersuchung der Unterkühlung und der Stabilität von bestimmten Mustern der Mikrostruktur die drei Phasen in einer gleichgewichtsnahen Anordnung im unteren Teil des Gebietes gesetzt.

Ausgehend von der initialen Mikrostruktur wachsen die drei Festphasen durch einen Temperaturgradienten G kontrolliert, der eine definierte Geschwindigkeit v hat, in die z -Richtung [289]. Dabei bilden sich unterschiedliche Mikrostrukturmuster parallel zur Erstarrungsfront aus.

An der erstarrten Seite des Simulationsgebietes ($z = 0$) wird eine Neumann-Randbedingung mit dem Gradienten Null aufgeprägt, da die Zeit- und Längenskala, auf denen die Änderungen der Mikrostruktur in den Festphasen stattfinden, verglichen mit denen der Erstarrung, klein sind. An der schmelzflüssigen Seite des Simulationsgebietes ($z = z_{max}$) wird eine Dirichlet-Randbedingung verwendet. Dadurch kann ein konstanter Konzentrationsfluss in das Gebiet, bzw. ein unendlich großes Reservoir der Schmelze vor der Erstarrungsfront modelliert werden. Senkrecht zur Wachstumsrichtung werden periodische Randbedingungen aufgeprägt, um ein unendlich ausgedehntes Gebiet zu simulieren. Allerdings sind durch die Gebietsgröße senkrecht zur Erstarrungsrichtung und durch die periodischen Randbedingungen die periodischen Länge vorgegeben, welche die entstehenden Mikrostrukturen erfüllen müssen. Der Einfluss dieser Randbedingung auf die entstehenden Muster wird in den Abschnitten 6.4 und 8.3 sowie in [70, 71] untersucht. Die Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung wird in Übereinstimmung mit [69–71, 243] im Folgenden als Basis-Größe bezeichnet.

Zur Verringerung des rechentechnischen Aufwands wird, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, ein analytischer Temperaturgradient zur Kontrolle der Erstarrungsgeschwindigkeit verwendet. Zusätzlich wird ein gleitendes Fenster (engl. moving window technique) [38, 154, 155] bei der Berechnung angewandt. Die Moving-Window-Technik wird über die Erstarrungshöhe gesteuert. Wenn die Erstarrungsfront über eine definierte Höhe gewachsen ist, wird das Simulationsgebiet in negative z -Richtung verschoben. Da die Diffusion in den Festphasen um Größenordnungen kleiner ist, als die Diffusion in der Schmelze, wird wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, die Festphasenmikrostrukturentwicklung nicht betrachtet. Dadurch bleibt die Mikrostruktur in den herausgeschobenen Zellen konstant und kann für die weitere Berechnung vernachlässigt werden. Die neu in das Gebiet verschobenen Zellen am oberen Rand des Simulationsgebietes werden mit Schmelze gefüllt. Durch das Verschieben bleibt das zu simulierende Gebiet (Basis-Größe \times Simulationshöhe) konstant, aber das berechnete Gebiet wird größer und die Höhe

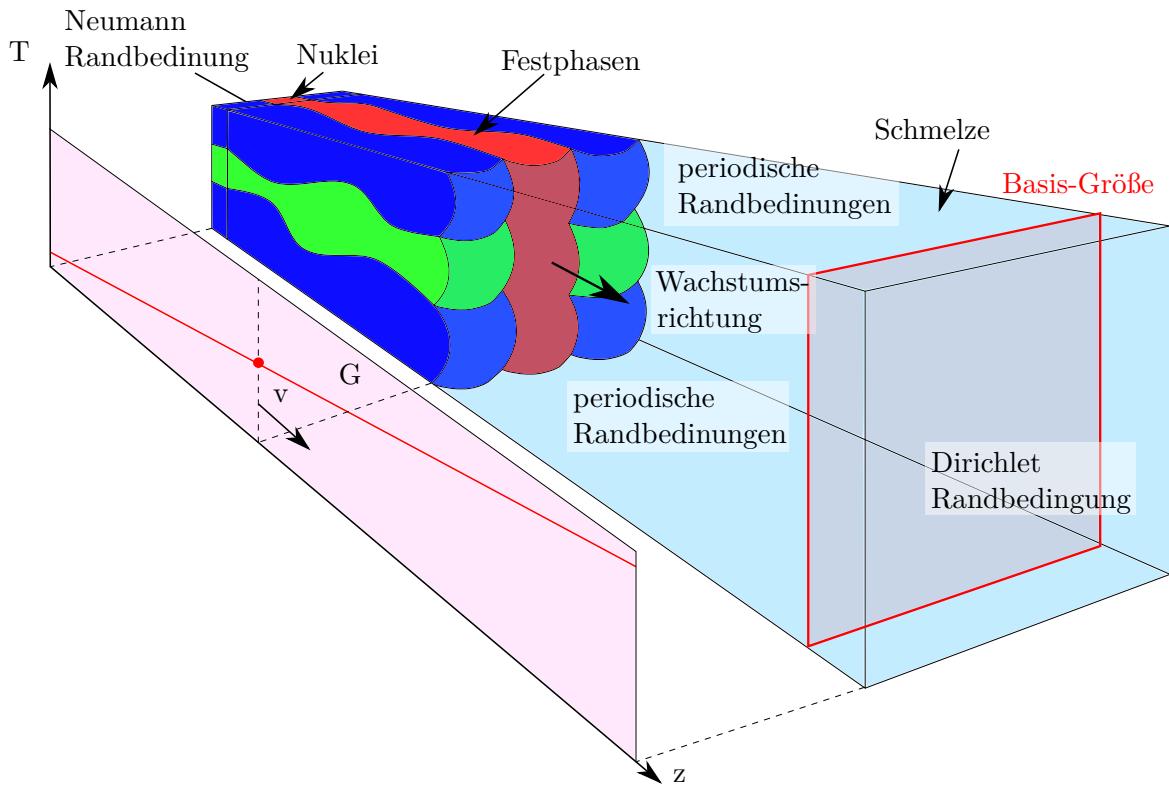


Abbildung 4.1.: Schematischer Simulationsaufbau zur Simulation der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika mit den verwendeten Randbedingungen. Die Erstarrung wird durch einen analytischen Temperaturgradienten mit definierter Geschwindigkeit kontrolliert. Zusätzlich ist die Basis-Größe dargestellt, welche die Fläche senkrecht zur Wachstumsrichtung ist. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [71].

der Wachstumsfront hängt von der Dauer der simulierten Zeit ab. Durch diese Optimierung lässt sich der benötigte Rechenaufwand deutlich reduzieren, was es ermöglicht, großskalige Simulationen durchzuführen.

5. Verwendete Methoden zur Quantifizierung und Validierung der Mikrostruktur

Im folgenden Kapitel werden die in dieser Arbeit verwendeten Methoden zur Quantifizierung der Mikrostruktur in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront und zur Validierung der Simulationsergebnisse vorgestellt. Diese Methoden werden für den Vergleich der Simulationen mit Experimenten und analytischen Ansätzen in den Kapiteln 6 bis 8 verwendet.

Dazu wird zunächst der angewandte Algorithmus zur Bestimmung der Anzahl der nächsten Nachbarn vorgestellt. Daran anschließend wird eine Methode zur Morphologieklassifizierung basierend auf den Flächenträgheitsmomenten 2. Ordnung eingeführt. Der dazu genutzte Algorithmus wird außerdem zur Bestimmung des Verhältnisses zwischen den maximalen und minimalen Abständen der Schwerpunkte jeder Faser und den jeweiligen Grenzflächen in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront in Abschnitt 6.4 verwendet. Weiterhin wird der analytische Ansatz von Jackson und Hunt [240] vorgestellt, wie er für die Berechnung der Unterkühlung, in Abhängigkeit von der Wachstumsgeschwindigkeit und der entstehenden Mikrostruktur während der gerichteten Erstarrung von ternären eutektischen Systemen in [253, 270, 327] hergeleitet wurde. Zuletzt wird das Vorgehen bei einer Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen erklärt.

5.1. Nächste-Nachbarn-Statistiken

Für eine schnelle und effiziente Berechnung der Anzahl der nächsten Nachbarn in Schnittbildern parallel zur Erstarrungsfront wird zunächst der in [328, 329] vorgestellte Segmentierungsalgorithmus genutzt. Die verschiedenen Segmente entsprechen dabei Bereichen der einzelnen Phasen, z. B. einzelne Fasern oder Lamellen.

Bei diesem Algorithmus wird jedem Segment $i = [1, S] \in \mathbb{N}$ in jeder Schnittebene $j = [1, E] \in \mathbb{N}$ eine eindeutige Identifikationsnummer ID_i^j zugeordnet. Weiterhin werden alle Tripelpunkte TP_k^j für $k = [1, T] \in \mathbb{N}$, d.h. Punkte, bei denen drei Festphasen in Kontakt stehen, eindeutig identifiziert und den angrenzenden Segmenten zugeordnet.

Auf Basis der gemeinsamen Tripelpunkte werden jedem Segment die jeweils benachbarten Segmente entsprechend ihrer Phase zugeordnet, falls diese nicht bereits als Nachbarn registriert sind. Durch diese Überprüfung werden Doppelzählungen vermieden. Daran anschließend wird ermittelt, ob Segmente existieren, die noch keine benachbarten Phasen über die Tripelpunkte zugeordnet haben, was einem Einschluss in eine Matrixphase ohne Kontakt zu weiteren Segmenten entspricht. Die Erstarrungshöhe und Anzahl dieser von einem anderen Segment komplett umschlossenen Segmente wird ausgegeben und nach Bestimmung der umgebenden Phase werden die Statistiken für diese Erstarrungshöhe dementsprechend korrigiert. Der verwendete Algorithmus zur Bestimmung der Anzahl der nächsten Nachbarn ist schematisch in Abb. 5.1 dargestellt.

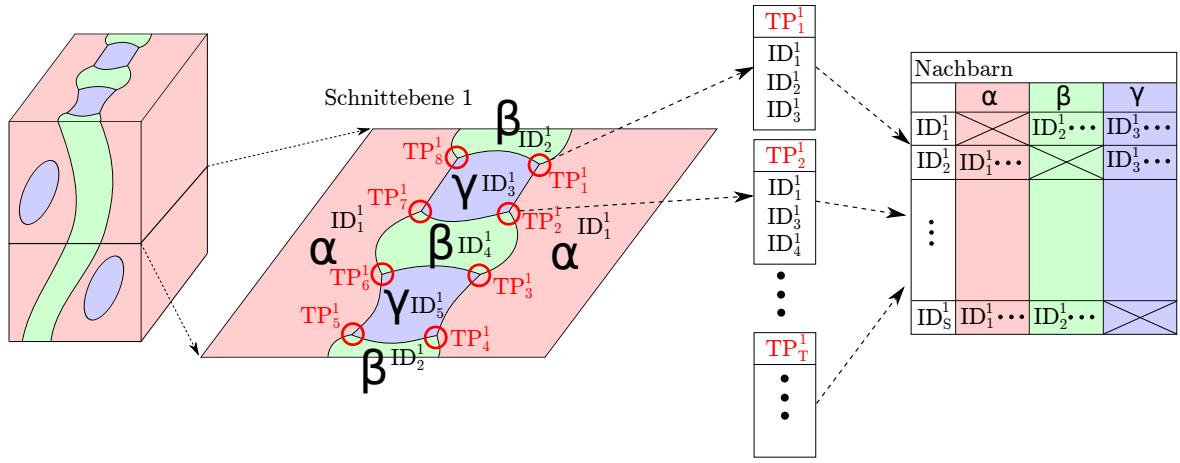


Abbildung 5.1.: Schematischer Ablaufplan zur Bestimmung der Anzahl der nächsten Nachbarn aus der 3D-Mikrostruktur mit der Segmentierung von Schnittbildern und der Zuordnung von benachbarten Phasen über die Tripelpunkte der Festphasen.

5.2. Morphologieklassifizierung basierend auf den Flächenträgheitsmomenten 2. Ordnung

Zur Klassifizierung der Form von Fasern in Ebenen parallel zur Erstarrungsfront wird eine Quantifizierungsmethode basierend auf den Flächenträgheitsmomenten 2. Ordnung genutzt. Die ursprünglich in der Arbeit von MacSleyn et al. [330] zur Charakterisierung von Kornwachstum hergeleitete Methode wird dabei auf zweidimensionale Flächen an Stelle dreidimensionaler Volumina angewandt. Ziel der Methode ist die Beschreibung der komplexen Formen von Fasern und Lamellen durch skalare Kennzahlen Ω_1 und Ω_2 , um sie anschließend miteinander vergleichen zu können und daraus statistische Aussagen über die entstehenden Muster zu treffen.

Zunächst wird die Herleitung der Kennzahlen auf Basis der Invarianten des Trägheitstensors beschrieben und anschließend ihre geometrische Interpretation diskutiert.

Ein Flächenträgheitsmoment $\mu'_{p,q}$ der Ordnung $p+q$ ist in einem kartesischen Koordinatensystem definiert als

$$\mu'_{p,q} = \int_{A_F} x^p y^q dA \quad \forall p, q \in \mathbb{N}_0, \quad (5.1)$$

mit den Koordinaten x und y in der betrachteten Fläche A und deren Exponenten p und q . Daraus ergeben sich die axialen Flächenträgheitsmomente zweiter Ordnung

$$\mu'_{20} = \int_{A_F} x^2 dA \quad \text{und} \quad \mu'_{02} = \int_{A_F} y^2 dA \quad (5.2)$$

sowie das Deviationsmoment

$$\mu'_{11} = \int_{A_F} xy dA. \quad (5.3)$$

Nach der Transformation der Flächenträgheitsmomente 2. Ordnung $\hat{\mu}'_{p,q} \forall p, q \in \{0, 1, 2\} \mid p + q = 2$ in ein Hauptachsensystem ergibt sich der Trägheitstensor bezüglich des Schwerpunktes bzw. Flächenmittelpunktes als

$$\mathbb{J} = \begin{pmatrix} \hat{\mu}_{02} & \hat{\mu}_{11} \\ \hat{\mu}_{11} & \hat{\mu}_{20} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \int_{A_{F,HA}} y^2 dA & \int_{A_{F,HA}} xy dA \\ \int_{A_{F,HA}} xy dA & \int_{A_{F,HA}} x^2 dA \end{pmatrix} \quad (5.4)$$

mit den Flächenträgheitsmomenten $\hat{\mu}_{0,2}$, $\hat{\mu}_{2,0}$ und $\hat{\mu}_{1,1}$ im Hauptachsensystem.

Die drei Hauptinvarianten O_1 , O_2 und O_3 des Trägheitstensors \mathbb{J} , die invariant gegen orthogonale Koordinatentransformationen sind, lassen sich als

$$O_1 = \text{Spur}(\mathbb{J}) = \hat{\mu}_{02} + \hat{\mu}_{20} \quad (5.5)$$

$$O_2 = \frac{1}{2} \left(\text{Spur}(\mathbb{J})^2 - \text{Spur}(\mathbb{J}^2) \right) = \hat{\mu}_{02}\hat{\mu}_{20} - \hat{\mu}_{11}^2 \quad (5.6)$$

$$O_3 = \text{Det}(\mathbb{J}) = \hat{\mu}_{02}\hat{\mu}_{20} - \hat{\mu}_{11}^2 \quad (5.7)$$

berechnen. Da \mathbb{J} im 2D-Fall immer symmetrisch ist, stimmen O_2 und O_3 überein und die ersten beiden Invarianten reichen für eine vollständige Klassifizierung aus. Die Hauptinvarianten werden entdimensionalisiert durch eine Normierung mit der Fläche A_F und anschließend, [330] folgend, invertiert, was in den Parametern

$$\hat{\omega}_1 = \frac{A_F^2}{\hat{\mu}_{02} + \hat{\mu}_{20}} \quad (5.8)$$

$$\hat{\omega}_2 = \frac{A_F^4}{\hat{\mu}_{02}\hat{\mu}_{20} - \hat{\mu}_{11}^2}. \quad (5.9)$$

resultiert. Nach einer weiteren Normierung von $\hat{\omega}_1$ und $\hat{\omega}_2$ mit den normierten und invertierten Hauptinvarianten eines Kreises ergeben sich die skalaren Kennzahlen

$$\Omega_1 = \frac{\hat{\omega}_1}{\hat{\omega}_{1,\text{Kreis}}} = \frac{A_F^2}{2\pi(\hat{\mu}_{02} + \hat{\mu}_{20})} \quad (5.10)$$

$$\Omega_2 = \frac{\hat{\omega}_2}{\hat{\omega}_{2,\text{Kreis}}} = \frac{A_F^4}{16\pi^2(\hat{\mu}_{02}\hat{\mu}_{20} - \hat{\mu}_{11}^2)}. \quad (5.11)$$

Der Wert Ω_1 beschreibt die Verzerrung der betrachteten Fläche und Ω_2 seine Form.

Für eine allgemeine Form, welche von den Funktionen $f(x)$ und $g(x)$ mit $f(x) \geq g(x)$ in $x \in [0, a]$ und $f(x) < \infty$ in $x \in [0, a]$ berandet ist, wie in Abb. 5.2 dargestellt, gilt

$$\text{I. } ab \geq \int_x f(x) - g(x) dx \geq \int_x \varepsilon dx > 0 \quad \text{und} \quad (5.12)$$

$$\text{II. } \int_x f(x)^3 - g(x)^3 dx \geq \int_x \zeta dx > 0. \quad (5.13)$$

Daraus ergibt sich Ω_1 in allgemeiner Form als

$$\begin{aligned} \Omega_1 &= \frac{A_F^2}{2\pi O_1} = \frac{A_F^2}{2\pi(\hat{\mu}_{02} + \hat{\mu}_{20})} = \frac{1}{2\pi} \frac{(\int_{A_F} dA)^2}{\int_{A_F} (x^2 + y^2) dA} = \frac{1}{2\pi} \frac{(\int_x \int_{y(x)} dy dx)^2}{\int_x \int_{y(x)} (x^2 + y^2) dy dx} \\ &= \frac{1}{2\pi} \frac{(\int_x f(x) - g(x) dx)^2}{\int_x x^2(f(x) - g(x)) + \frac{f(x)^3}{3} - \frac{g(x)^3}{3} dx}. \end{aligned} \quad (5.14)$$

Durch die Verwendung der Annahmen I. und II. sowie $x \in [0, a]$ folgt, dass $\Omega_1 > 0$ ist.

Weiterhin lässt sich folgende Abschätzung durchführen:

$$\begin{aligned}\Omega_1 &= \frac{1}{2\pi} \frac{(\int_x f(x) - g(x)dx)^2}{\int_x x^2(f(x) - g(x)) + \frac{f(x)^3}{3} - \frac{g(x)^3}{3} dx} \\ &\leq \frac{1}{2\pi} \frac{a^2 b^2}{\int_x x^2(f(x) - g(x)) + \frac{f(x)^3}{3} - \frac{g(x)^3}{3} dx} \\ &\leq \frac{1}{2\pi} \frac{a^2 b^2}{\int_x x^2 \varepsilon + \frac{\zeta}{3} dx} \\ &= \frac{3}{2\pi} \frac{a^2 b^2}{\varepsilon a^3 + \zeta a} \quad (5.15)\end{aligned}$$

$$\Rightarrow \lim_{a \rightarrow \infty} \Omega_1 \leq \lim_{a \rightarrow \infty} \frac{3}{2\pi} \frac{a^2 b^2}{\varepsilon a^3 + \zeta a} = 0 \quad (5.16)$$

$$\Rightarrow \lim_{a \rightarrow \infty} \Omega_1 = 0 \quad (5.17)$$

Bei einer gegen unendlich gehenden Verzerrung einer Form strebt ihr Ω_1 -Wert gegen null. Das gleiche Ergebnis erhält man bei einer Grenzwertbetrachtung mit $b \rightarrow 0$.

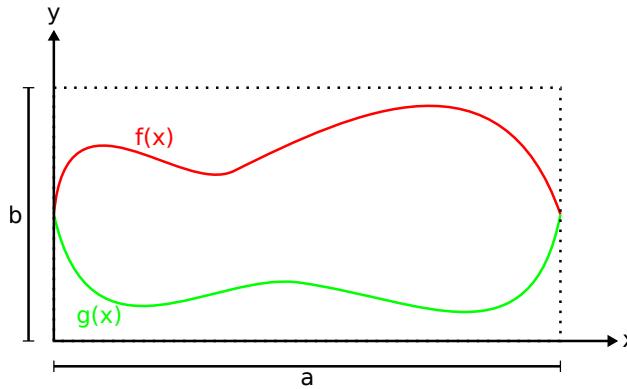


Abbildung 5.2.: Allgemeine Fläche aufgespannt zwischen $f(x)$ und $g(x)$

Aufgrund der Definition der Kennzahlen ist $\Omega_1 = \Omega_2 = 1$ für einen Kreis. Für Ellipsen gilt für die Kennzahlen: $\Omega_1 \in [0, 1]$ und $\Omega_2 = 1$. Dementsprechend beschreibt Ω_2 die Abweichung von der Kreis- bzw. Ellipsenform. Der mögliche Wertebereich von Ω_1 liegt im Intervall $[0, 1]$ und für Ω_2 ergeben sich Werte von $[\Omega_1^2, 1]$, wie in Abb. 5.3 dargestellt.

Um den Trägheitstensor im Hauptachsensystem zu bestimmen, müssen die Schwerpunktskoordinaten der betrachteten Fläche berechnet werden. Durch die periodischen Randbedingungen parallel zur Erstarrungsfront in den Simulationen, können die Flächen sich auch über die periodischen Ränder hinweg ausdehnen. Daher wird der Algorithmus von Bai und Breen [331] zur Berechnung der Schwerpunktskoordinaten verwendet. Der Algorithmus ist beispielhaft in Abb. 5.4 illustriert.

Zunächst werden alle N Punkte P_i der betrachteten Struktur mit den Koordinaten x_i, y_i auf eine Linie senkrecht zu einem der periodischen Ränder projiziert und anschließend mit

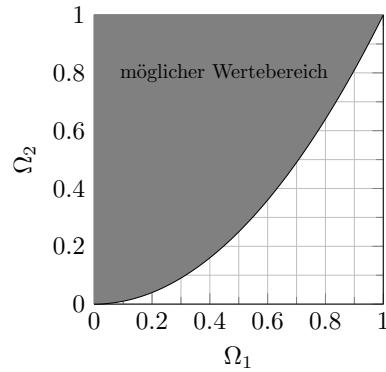


Abbildung 5.3.: Möglicher Wertebereich für die Kennzahlen Ω_1 und Ω_2

$s_i = x_i/x_{max}$ normiert, wobei x_{max} der maximal mögliche Koordinatenwert der Linie ist. Bei der Projektion wird vorausgesetzt, dass die periodischen Ränder geradlinig sind. Die unabhängige Betrachtung der Schwerpunktskoordinaten ergibt sich aus der linearen Unabhängigkeit der Einheitsvektoren in einem kartesischen Koordinatensystem.

Basierend auf der Projektion wird jeder Punkt der Linie s_i durch die Koordinatentransformation mit den Koordinaten \hat{x}_i , \hat{y}_i

$$\hat{x}_i = \cos(2\pi s_i) \quad (5.18)$$

$$\hat{y}_i = \sin(2\pi s_i) \quad (5.19)$$

auf einen Kreis abgebildet. Aus den jeweiligen Koordinaten wird der geometrische Mittelwert als

$$\bar{\hat{x}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \hat{x}_i \quad (5.20)$$

$$\bar{\hat{y}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \hat{y}_i \quad (5.21)$$

für jeden der N Punkte berechnet. Die beiden gemittelten Werte werden mit der Abbildungsvorschrift

$$\bar{x} = x_{max} \left(\frac{atan2(-\bar{\hat{y}}, -\bar{\hat{x}})}{2\pi} + \frac{1}{2} \right). \quad (5.22)$$

in das ursprüngliche Koordinatensystem zurückprojiziert. Die Berechnungsvorschrift wird für alle Richtungen mit periodischen Randbedingungen wiederholt.

Die mit diesem Algorithmus bestimmten Schwerpunkte in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront werden in Abschnitt 6.4 ebenfalls genutzt, um den minimalen und maximalen Abstand vom Schwerpunkt zur Grenzfläche der jeweiligen Faser zu bestimmen.

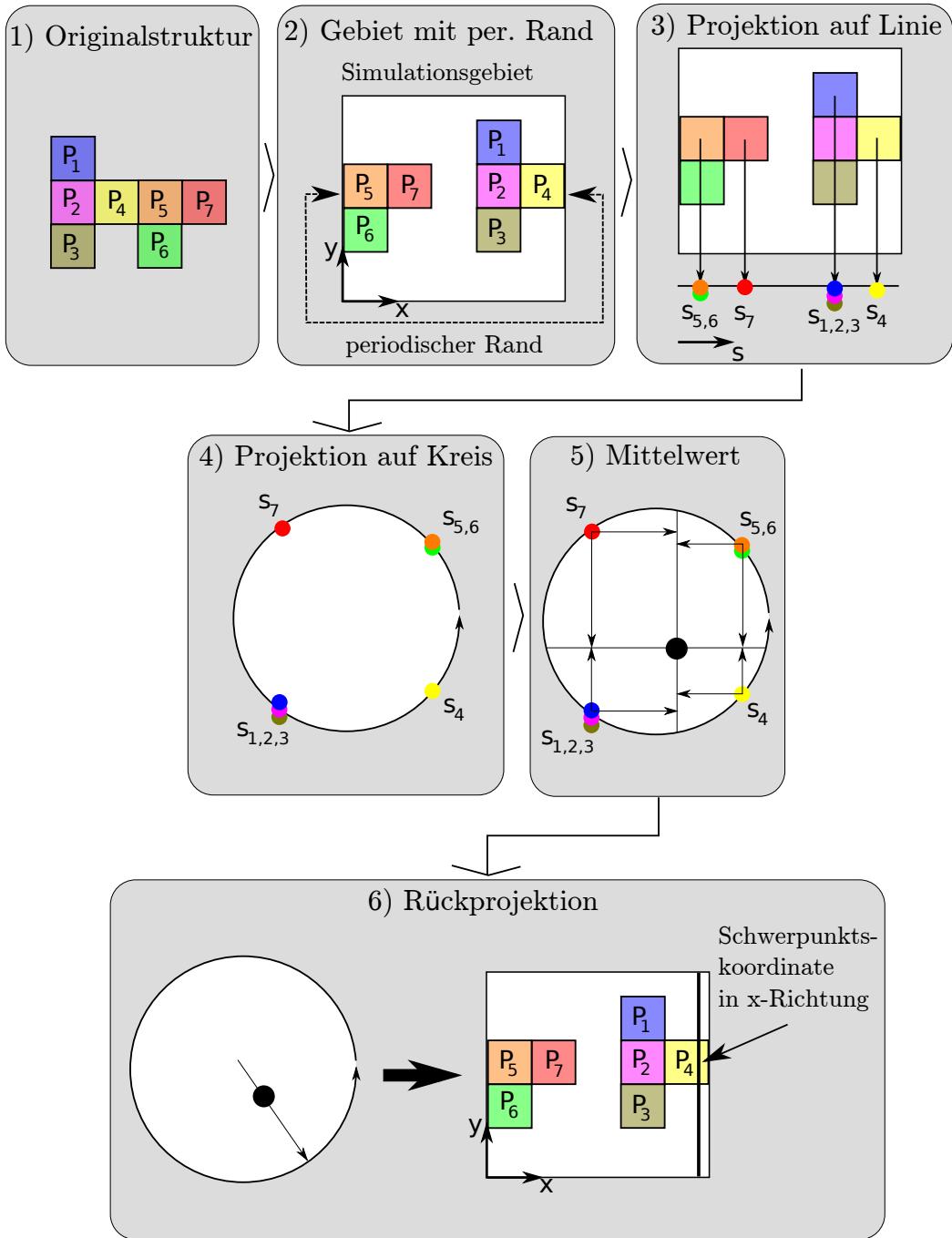


Abbildung 5.4.: Schematische Darstellung des Algorithmus von [331] zur Schwerpunktsberechnung in Gebieten mit periodischen Rändern

5.3. Jackson-Hunt-Analyse

Im Folgenden werden die Herleitungen der durchschnittlichen Frontunterkühlung für ein dreiphasiges ternäres eutektisches System während der gerichteten Erstarrung von Hime miya und Umeda [253] (HU1999) sowie von Choudhury, Plapp und Nestler [270] (CPN2011), welche beide dem Vorgehen von Jackson und Hunt [240] folgen, rekapituliert und diskutiert.

Die Unterkühlung ΔT ist definiert als der Unterschied zwischen der Temperatur an der Erstarrungsfront T_{Front} und der Temperatur des ternären eutektischen Punktes T_E . Basierend auf der Gibbs-Thomson-Gleichung kann ΔT als

$$\Delta T = T_E - T_{Front} = \Delta T_{Solutal} + \Delta T_{Krümmung} + \Delta T_{Kinetik}, \quad (5.23)$$

mit der solutalen Unterkühlung $\Delta T_{Solutal}$, der Unterkühlung durch die Krümmung der Wachstumsfront $\Delta T_{Krümmung}$ sowie der kinetischen Unterkühlung $\Delta T_{Kinetik}$ ausgedrückt werden. Nach [240] kann $\Delta T_{Kinetik}$ für die diffusionskontrollierte Erstarrung von Metallen vernachlässigt werden, was in einem ternären eutektischen System für Festphase ξ zu einer Unterkühlung der Form

$$\Delta T^\xi = \underbrace{m_B^\xi (c_B^\xi - c_B^E) + m_C^\xi (c_C^\xi - c_C^E)}_{\Delta T_{Solutal}^\xi} + \underbrace{\Gamma^\xi \langle \kappa^\xi \rangle}_{\Delta T_{Krümmung}^\xi} \quad (5.24)$$

führt. Die Unterkühlung ΔT^ξ der Phase ξ ist abhängig von der Steigung der Liquidusfläche m_X^ξ in der Umgebung des ternären eutektischen Punktes in Richtung des chemischen Elementes X , der Konzentration c_X^ξ des chemischen Elementes X in der Phase ξ , dem Gibbs-Thomson-Koeffizienten Γ^ξ sowie der durchschnittlichen Krümmung $\langle \kappa^\xi \rangle$. Der Parameter ξ beschreibt allgemein eine der drei Festphasen α, β, γ .

Zunächst wird für die beiden Ansätze HU1999 [253] und CPN2011 [270] jeweils die Berechnung der solutalen Unterkühlung $\Delta T_{Solutal}^\xi$ sowie der krümmungsbasierten Unterkühlung $\Delta T_{Krümmung}^\xi$ vorgestellt. Anschließend wird die Bestimmung der durchschnittlichen Gesamtunterkühlung der Erstarrungsfront ΔT gezeigt. Da CPN2011 nur Lösungen für zweidimensionales Wachstum bietet, wird die Methode im Rahmen dieser Thesis auf Basis von HU1999 für dreidimensionales Wachstum ternärer Eutektika erweitert.

5.3.1. Berechnung der solutalen Unterkühlung

Die Konzentrationsfelder der chemischen Elemente müssen die Stefan-Bedingung erfüllen, welche die Massenerhaltung widerspiegelt. Unter der Annahme einer planaren Erstarrungsfront, kann diese Bedingung an der ξ -Schmelze Grenzfläche ($z = 0$) als

$$D \frac{\partial c_X^{liq}}{\partial z} |_{z=0} = v(c_X^{liq} - c_X^\xi) \quad (5.25)$$

für alle Festphasen $\xi = \alpha, \beta, \gamma$ und für alle chemischen Elemente $X=A,B,C$, mit der Erstarrungsgeschwindigkeit v in Wachstumsrichtung z ausgedrückt werden. Es wird angenommen, dass der Diffusionskoeffizient D für alle Komponenten in der Schmelze gleich ist.

Für eine planare eutektische Front kann das Konzentrationsfeld einer Komponente mit einem Fourierreihenansatz als

$$\begin{aligned} c_X^{liq} = & c_X^\infty + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} A_{X,nm} \cos\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) \cos\left(\frac{2m\pi y}{\lambda_2}\right) e^{-q_{nm} z} \\ & + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} B_{X,nm} \sin\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) \cos\left(\frac{2m\pi y}{\lambda_2}\right) e^{-q_{nm} z} \\ & + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} C_{X,nm} \sin\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) \sin\left(\frac{2m\pi y}{\lambda_2}\right) e^{-q_{nm} z} \\ & + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} D_{X,nm} \cos\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) \sin\left(\frac{2m\pi y}{\lambda_2}\right) e^{-q_{nm} z} \end{aligned} \quad (5.26)$$

mit den kartesischen Koordinaten x und y parallel zur Wachstumsfront, den lamellaren Abständen λ_1 und λ_2 in die beiden Richtungen, sowie den Fourierkoeffizienten $A_{X,nm}$, $B_{X,nm}$, $C_{X,nm}$ und $D_{X,nm}$ bestimmt werden. Die Konzentration der Komponente X in der Schmelze an der Stelle $z = \infty$ ist als c_X^∞ definiert. Die Gleichung kann durch die Ausnutzung von Symmetriebedingungen für die Fourierkoeffizienten vereinfacht werden.

Für das zweidimensionale Wachstum reduziert sich Gl. (5.26) zu

$$c_X^{liq} = c_X^\infty + \sum_{n=0}^{\infty} A_{X,n} \cos\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) e^{-q_n z} + \sum_{n=0}^{\infty} B_{X,n} \sin\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) e^{-q_n z}, \quad (5.27)$$

mit den Fourierkoeffizienten $A_{X,n}$ und $B_{X,n}$.

Die Parameter q_n für zweidimensionales und q_{nm} für dreidimensionales Wachstum können als

$$q_n = \frac{v}{2D} + \sqrt{\left(\frac{v}{2D}\right)^2 + \left(\frac{2n\pi}{\lambda_1}\right)^2} \quad (5.28)$$

$$q_{nm} = \frac{v}{2D} + \sqrt{\left(\frac{v}{2D}\right)^2 + \left(\frac{2n\pi}{\lambda_1}\right)^2 + \left(\frac{2m\pi}{\lambda_2}\right)^2} \quad (5.29)$$

bestimmt werden, um die stationäre Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial^2 c_X^{liq}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c_X^{liq}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c_X^{liq}}{\partial z^2} = \frac{D}{v} \frac{\partial c_X^{liq}}{\partial z}, \quad (5.30)$$

zu erfüllen, welche aus der Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial c_X^{liq}}{\partial t} = \frac{\partial D \frac{\partial c_X^{liq}}{\partial x}}{\partial x} + \frac{\partial D \frac{\partial c_X^{liq}}{\partial y}}{\partial y} + \frac{\partial D \frac{\partial c_X^{liq}}{\partial z}}{\partial z} = \langle \nabla, D \nabla c_X^{liq} \rangle \quad (5.31)$$

bzw. den Fick'schen Gesetzen hergeleitet werden kann.

Für eine diffusionskontrollierte Erstarrung von Metallen, d.h. für eine Erstarrung mit niedrigen Geschwindigkeiten und kleinen lamellaren Abständen, ist die Péclet-Zahl klein [270], was

bedeutet, dass $v/D \ll 2n\pi/\lambda_1 + 2m\pi/\lambda_2$ ist für $n, m > 0$. Daher kann, wie in [253, 305] beschrieben, Gl. (5.29) zu

$$\text{für } n = 0 \text{ und } m = 0 : \quad q_{00} = \frac{v}{D}, \quad (5.32)$$

$$\text{für } n > 0 \text{ und } m = 0 : \quad q_{n0} \approx \frac{2n\pi}{\lambda_1}, \quad (5.33)$$

$$\text{für } n = 0 \text{ und } m > 0 : \quad q_{0m} \approx \frac{2m\pi}{\lambda_2}, \quad (5.34)$$

$$\text{für } n > 0 \text{ und } m > 0 : \quad q_{nm} \approx \frac{2n\pi}{\lambda_1} + \frac{2m\pi}{\lambda_2} \quad (5.35)$$

vereinfacht werden. Ein ähnliches Vorgehen kann für den Parameter q_n in Gl. (5.28) beim zweidimensionalen Wachstum verwendet werden.

Nach dem Einsetzen von Gl. (5.26) in die Stefan-Bedingung (5.25) und der Integration über jeweils eine Periode von λ_1 und λ_2 können die Fourierkoeffizienten berechnet werden. In HU1999 wird auch der nullte Fourierkoeffizient mit diesem Vorgehen berechnet. Dabei wird angenommen, dass die Phasenfraktionen der entstehenden Mikrostruktur gleich denen bei T_E sind. CPN2011 argumentiert, Jackson und Hunt [240] folgend, dass sich die Konzentrationen der Festphasen von denen am eutektischen Punkt unterscheiden, da die Erstarrung bei Temperaturen unterhalb der Temperatur des ternären eutektischen Punktes T_E stattfindet. Daher hängen die Koeffizienten von den lokalen Erstarrungsbedingungen ab, was eine selbstkonsistente Berechnung und damit einen deutlich höheren rechentechnischen Aufwand erfordert. Daher werden im Ansatz von CPN2011 die nullten Fourierkoeffizienten als Unbekannte behandelt und während der Berechnung der durchschnittlichen Frontunterkühlung berechnet.

Im Folgenden wird die Berechnung der durchschnittlichen Konzentrationen jedes chemischen Elements an allen ξ -Flüssig-Grenzflächen in 2D von CPN2011 für eine beliebige Anordnung der Lamellen und von HU1999 für die Anordnung der Lamellen $\alpha - \beta - \gamma - \beta$ vorgestellt. In der korrigierten Version von CPN2011 in [311] werden die Fourierkoeffizienten für $n > 0$ aus Gl. (5.26) für zweidimensionales eutektisches Wachstum in der x - z -Ebene nach Verwendung diverser trigonometrischer Additionstheoreme als

$$A_{X,n} = \frac{2v}{Dq_n\pi n} \sum_{j=0}^{L-1} (c_X^{liq} - c_X^{\xi_j}) \cos(\pi n(x_{j+1} + x_j)) \sin(\pi n(x_{j+1} - x_j)) \quad (5.36)$$

$$C_{X,n} = \frac{2v}{Dq_n\pi n} \sum_{j=0}^{L-1} (c_X^{liq} - c_X^{\xi_j}) \sin(\pi n(x_{j+1} + x_j)) \sin(\pi n(x_{j+1} - x_j)) \quad (5.37)$$

berechnet. Der Parameter L beschreibt dabei die Anzahl der unterschiedlichen Phasenregionen in einem periodischen 2D-Gebiet. Die relativen Positionen der Fest-Fest-Phasengrenzen werden durch $x_j = [0, 1]$ mit $x_0 = 0$ und $x_L = 1$ beschrieben.

Resultierende Konzentrationsfelder der chemischen Elemente A , B und C in der Schmelze bei einer Phasenanordnung $\alpha - \beta - \gamma$ sind beispielhaft in Abb. 5.5 nebeneinander dargestellt. Dabei ist c_A^{liq} in rot, c_B^{liq} in grün und c_C^{liq} in blau abgebildet. Von der ξ -Schmelze Grenzfläche aus ($z = 0$), konvergieren die Konzentrationen der chemischen Elemente in z -Richtung zu den Werten der Zusammensetzung am ternären eutektischen Punkt.

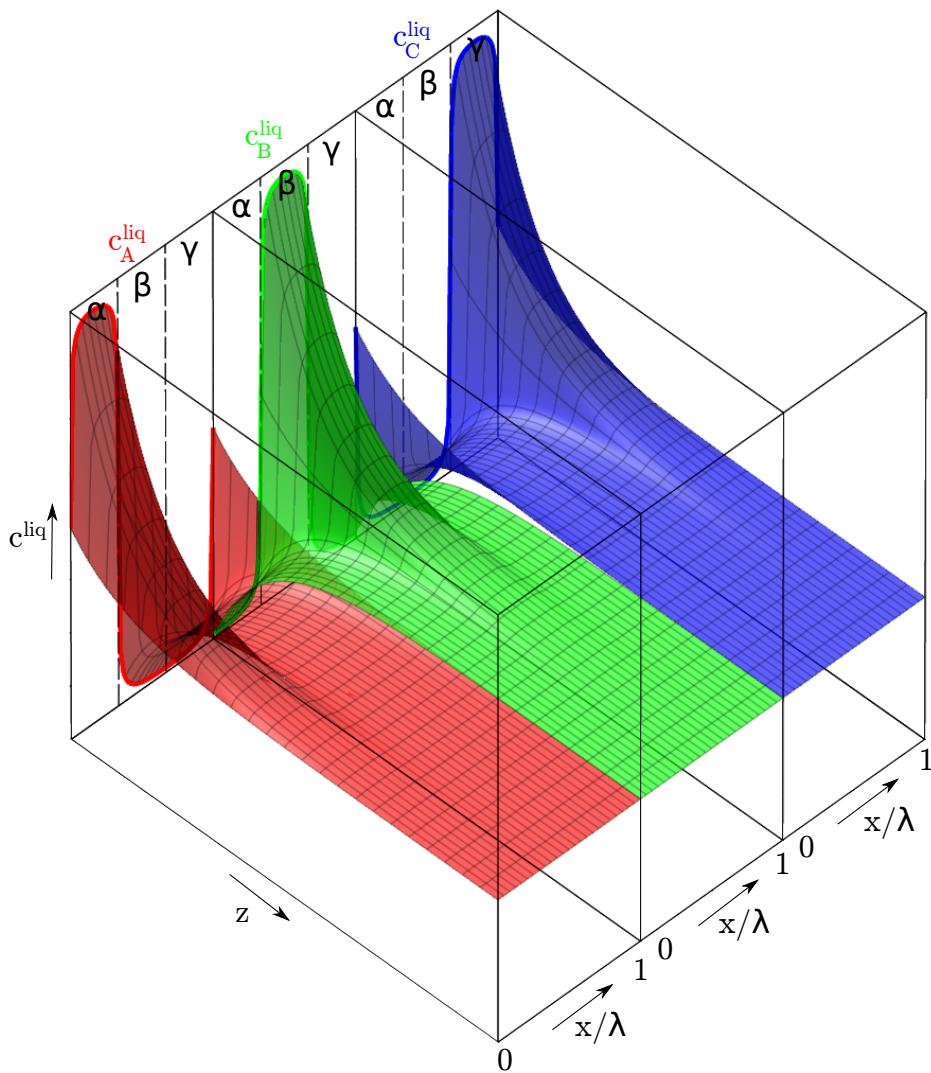


Abbildung 5.5.: Schematische Darstellung der Konzentrationsfelder der chemischen Elemente A , B und C in der Schmelze nebeneinander für die zweidimensionale lamellare Anordnung $\alpha - \beta - \gamma$.

Die durchschnittliche Konzentration an der Erstarrungsfront der Phasenregion l kann dann als

$$\langle c_X^{\text{liq}} \rangle^l = \frac{1}{(x_{l+1} - x_l)\lambda} \int_{x_l\lambda}^{x_{l+1}\lambda} c_X^{\text{liq}} dx \quad (5.38)$$

bestimmt werden.

Falls eine Festphase ξ mehrfach in einer periodischen Länge des betrachteten Gebietes auftaucht, kann die durchschnittliche Konzentration der Phase durch den gewichteten Mittelwert aller

Phasenregionen der Phase ξ mit

$$\langle c_X \rangle^\xi = \frac{\sum_{l=0}^{L-1} \langle c_X \rangle^l (x_{l+1} - x_l) \delta_{\xi_l \xi}}{\sum_{l=0}^{L-1} (x_{l+1} - x_l) \delta_{\xi_l \xi}} \quad (5.39)$$

berechnet werden. Dabei ist $\delta_{\xi_l \xi}$ das Kronecker-Symbol, welches von der betrachteten Phase ξ_l in der Summe abhängt. Aus den gemittelten Konzentrationen lässt sich die solutale Unterkühlung in Abhängigkeit vom unbekannten nullten Fourierkoeffizienten A_0 berechnen.

In der Arbeit von HU1999 wird ein ähnlicher Ansatz verwendet, um die solutale Unterkühlung zu berechnen, welcher im Folgenden vorgestellt wird. Ähnlich wie in CPN2011 wird der Ansatz von Gl. (5.26) in die Stefan-Bedingung (Gl. (5.25)) eingesetzt. Allerdings werden damit alle Fourierkoeffizienten bestimmt. Für zweidimensionales Wachstum der Phasenanordnung $\alpha - \beta - \gamma - \beta$ ergibt sich das Konzentrationsfeld der Komponente X in der Schmelze unter Ausnutzung der Symmetriebedingungen als

$$c_X^{liq} = c_X^\infty + A_{X,0} e^{-\frac{vz}{D}} + \sum_{n=1}^{\infty} A_{X,n} \cos\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) e^{-\frac{2n\pi}{\lambda_1} z} \quad \text{mit} \quad (5.40)$$

$$A_{X,0} = \sum_{\xi=1}^{N-1} (c_X^E - c_X^\xi) \eta_\xi \quad \text{und} \quad (5.41)$$

$$A_{X,n} = \frac{v\lambda}{Dn^2\pi^2} \left((c_X^\beta - c_X^\gamma) \sin(n\pi\eta_\gamma) + (c_X^\alpha - c_X^\beta) \sin(n\pi(\eta_\beta + \eta_\gamma)) \right), \quad (5.42)$$

mit η_ξ als den Phasenfraktionen der $N - 1$ Festphasen. Daraus wird die durchschnittliche Frontunterkühlung jeder Festphase ähnlich wie in CPN2011 berechnet. In HU1999 sind weitere analytische Lösungen für eine hexagonale Struktur mit eingebetteter Faser und eine Kettenstruktur übersichtsartig hergeleitet. Die ausführlichen Herleitungen sind in [305] publiziert.

5.3.2. Berechnung der krümmungsbasierten Unterkühlung

Für die Berechnung von $\Delta T_{Krümmung}^\xi$ lässt sich die Krümmung κ in die Richtungen x und y nach [240, 253, 270, 305] als

$$\kappa_1 = \frac{-\frac{\partial^2 \zeta}{\partial x^2}}{\left[\left(\frac{\partial \zeta}{\partial x}\right)^2 + 1\right]^{\frac{3}{2}}} \quad \kappa_2 = \frac{-\frac{\partial^2 \zeta}{\partial y^2}}{\left[\left(\frac{\partial \zeta}{\partial y}\right)^2 + 1\right]^{\frac{3}{2}}}, \quad (5.43)$$

berechnen, welche von der Position der Fest-Flüssig-Grenzfläche in z-Richtung $\zeta(x, y)$ abhängt. Daraus kann mit einem Mittelungsansatz die durchschnittliche Krümmung als

$$2D: \quad \langle \kappa \rangle_l = \frac{1}{(x_{l+1} - x_l)\lambda} \int_{x_l\lambda}^{x_{l+1}\lambda} \kappa_1 dx \quad (5.44)$$

$$3D: \quad \langle \kappa \rangle_l = \frac{1}{2(x_{l+1} - x_l)\lambda_1} \int_{x_l\lambda_1}^{x_{l+1}\lambda_1} \kappa_1 dx + \frac{1}{2(y_{l+1} - y_l)\lambda_2} \int_{y_l\lambda_2}^{y_{l+1}\lambda_2} \kappa_2 dy \quad (5.45)$$

berechnet werden. Unter Ausnutzung der Beziehung $\partial\zeta/\partial x = \tan(\phi_x)$ bzw. $\partial\zeta/\partial y = \tan(\phi_y)$ für die Winkel zwischen der gekrümmten Fläche und der x - y -Fläche (ϕ_x und ϕ_y) sowie einer Koordinatentransformation lässt sich die Krümmung in Abhängigkeit von den Kontaktwinkeln an den Tripel- oder Quadrupel-Punkten mit dem Young'schen Gesetz aus den Grenzflächenenergien ausdrücken. Falls mehr als eine Phasenregion der Phase ξ in der Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung z auftritt, kann die durchschnittliche Krümmung dieser Phase über den gewichteten Mittelwert als

$$\langle\kappa\rangle_\xi = \frac{\sum_{l=0}^{L-1} \langle\kappa\rangle_l (x_{l+1} - x_l) \delta_{\xi_l \xi}}{\sum_{l=0}^{L-1} (x_{l+1} - x_l) \delta_{\xi_l \xi}}, \quad (5.46)$$

bestimmt werden, ähnlich wie in Gl. (5.39).

Die Gibbs-Thomson-Koeffizienten können mit

$$\Gamma^\xi = \frac{\sigma^{\xi \text{ liq}} \sqrt{\sum_{i=1}^2 m_i^{\xi \text{ liq}}}}{\sqrt{\sum_{j=1}^2 \left(\sum_{i=1}^2 \frac{\partial^2 g^\xi}{\partial c_i^\xi \partial c_j^\xi} (c_i^\xi - c_i^{\text{liq}}) \right)^2}} \quad (5.47)$$

aus [332] bestimmt werden. Dabei ist g^ξ die Gibbs-Energie der Phase ξ und $\sigma^{\xi \text{ liq}}$ die Grenzflächenenergie zwischen den Phasen ξ und der flüssigen Phase.

Aus den gemittelten Krümmungen $\langle\kappa\rangle_\xi$ und den Gibbs-Thomson-Koeffizienten Γ^ξ kann die durchschnittliche krümmungsbasierte Unterkühlung $\Delta T_{\text{Krümmung}}^\xi$ an der Erstarrungsfront für jede Festphase ξ bestimmt werden.

5.3.3. Berechnung der durchschnittlichen Frontunterkühlung

Im Folgenden wird die Berechnung der durchschnittlichen Frontunterkühlung für eine konstante Wachstumsgeschwindigkeit vorgestellt. Dazu wird angenommen, dass die Frontunterkühlung für alle drei Festphasen gleich ist:

$$\Delta T = \Delta T^\alpha = \Delta T^\beta = \Delta T^\gamma. \quad (5.48)$$

Da in HU1999 der nullte Fourierkoeffizient mit Gl. (5.25) bestimmt wird, ergibt sich für die durchschnittliche Frontunterkühlung jeder Phase ein Ausdruck der Form

$$\Delta T^\xi = A^\xi v \lambda_1 + B^\xi \frac{1}{\lambda_1} \quad \forall \xi. \quad (5.49)$$

Die Parameter A^ξ und B^ξ in (5.49) fassen die hergeleiteten Ausdrücke für $\Delta T_{\text{Solatal}}^\xi$ und $\Delta T_{\text{Krümmung}}^\xi$ zusammen. Bei zweidimensionalen Mustern hängen A^ξ und B^ξ nur vom lamellaren Abstand λ_1 ab. Bei dreidimensionalen Mustern ergibt sich ein weiterer lamellarer Abstand, weshalb A^ξ und B^ξ in 3D-Mustern von zwei lamellaren Abständen λ_1 und λ_2 abhängen.

Mit der Annahme gleicher Unterkühlungen aus Gl. (5.48) und einer Mittelung der Einzelunterkühlungen ergibt sich die Frontunterkühlung als

$$\Delta T = \frac{3}{\sum_{\xi=1}^3 \frac{1}{A^\xi}} v \lambda_1 + \frac{\sum_{\xi=1}^3 \frac{B^\xi}{A^\xi}}{\sum_{\xi=1}^3 \frac{1}{A^\xi}} \frac{1}{\lambda_1}. \quad (5.50)$$

Dieses Ergebnis beschreibt den Zusammenhang zwischen der durchschnittlichen Frontunterkühlung und dem lamellaren Abstand während des zweidimensionalen [253, 270, 305] und dreidimensionalen [253, 305] Wachstums ternärer Eutektika für konstante Erstarrungsgeschwindigkeiten.

CPN2011 nutzt ein anderes Vorgehen zur Berechnung der durchschnittlichen Frontunterkühlung. Da die nullten Fourierkoeffizienten (A_0, B_0, C_0 für die drei Komponenten) als Unbekannte angenommen werden, wird die durchschnittliche Frontunterkühlung für jede der drei Festphasen zu

$$\Delta T^\alpha = \hat{a}^\alpha(B_0, C_0) + \hat{A}^\alpha(\lambda_1)v\lambda_1 + \hat{B}^\alpha(\lambda_1)\frac{1}{\lambda_1} \quad (5.51)$$

$$\Delta T^\beta = \hat{a}^\beta(A_0, C_0) + \hat{A}^\beta(\lambda_1)v\lambda_1 + \hat{B}^\beta(\lambda_1)\frac{1}{\lambda_1} \quad (5.52)$$

$$\Delta T^\gamma = \hat{a}^\gamma(A_0, B_0) + \hat{A}^\gamma(\lambda_1)v\lambda_1 + \hat{B}^\gamma(\lambda_1)\frac{1}{\lambda_1} \quad (5.53)$$

zusammengefasst. Durch die Verwendung der Relation $A_0 + B_0 + C_0 = 0$ aus der Stefan-Bedingung in Gl. (5.25) und der Annahme gleicher Unterkühlungen für alle drei Festphasen in Gl. (5.48) erhält man einen Satz eindeutig lösbarer, linear unabhängiger Gleichungen. Wie in [219] gezeigt und in CPN2011 erwähnt, ist die Annahme gleicher Unterkühlungen erfüllt für Systeme mit ähnlichen Phasenanteilen der Festphasen. Für unsymmetrische Systeme in 2D, Systeme mit ungleichen Phasenanteilen oder 3D-Strukturen kann diese Annahme zu inkorrekteten Ergebnissen führen.

Da für das Vorgehen von CPN2011 keine Lösungen für dreidimensionale Anordnungen der Phasen veröffentlicht sind, wird im Rahmen dieser Arbeit ein Ansatz, basierend auf HU1999 für Kettenmuster, mit den Annahmen von CPN2011 hergeleitet. Das Vorgehen dazu ist ebenfalls in [327] beschrieben. Aus Gl. (5.26) lassen sich nach Anwendung der Symmetriebedingungen die Konzentrationsfelder an der Erstarrungsfront als Gleichungen der Form

$$c_X^{liq} = c_X^\infty + A_{X,00} + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} A_{X,nm} \cos\left(\frac{2n\pi x}{\lambda_1}\right) \cos\left(\frac{2m\pi y}{\lambda_2}\right) \quad (5.54)$$

für jede der drei Komponenten A, B und C in Abhängigkeit von den drei nullten Fourierkoeffizienten $A_{A,00}, A_{B,00}$ und $A_{C,00}$ bestimmen. Unter Ausnutzung der Bedingung, dass die Summe der drei nullten Fourierkoeffizienten gleich null ist und der Annahme gleicher Unterkühlungen, lässt sich somit eine eindeutige durchschnittliche Gesamtunterkühlung berechnen. Diese beschreibt das Verhalten einer dreidimensionalen Kettenstruktur und erfüllt gleichzeitig die

Bedingungen gleicher Frontunterkühlungen der drei Festphasen. Diese Vorgehensweise wird im Folgenden als $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ bezeichnet.

Die Ergebnisse der drei Ansätze ($HU1999$, $CPN2011$ und $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$) werden in Abschnitt 6.2 und Abschnitt 8.5.1 für einen quantitativen Vergleich mit Phasenfeldsimulationen genutzt.

5.4. Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen

Zur Analyse von Mikrostrukturen werden im Rahmen dieser Dissertation Hauptkomponentenanalysen (engl. Principal Component Analysis (PCA)) basierend auf Zweipunktkorrelationen (ZPK) von zweidimensionalen Schnittbildern parallel zur Erstarrungsfront verwendet. Die Analysen wurden im Rahmen einer Kooperation mit dem Lehrstuhl von Prof. Dr. Surya R. Kalidindi vom Georgia Institute of Technology, Atlanta, USA durchgeführt. Die verwendete Methode zur Berechnung der Zweipunktkorrelationen und der Hauptkomponentenanalyse ist in [333–340] publiziert. Im folgenden Abschnitt werden die mathematischen Grundlagen der Methode vorgestellt.

Berechnung von Zweipunktkorrelationen

Die ZPK, als Sonderform der n -Punktkorrelationen, beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass am Anfang und Ende eines Vektors $\hat{\mathbf{r}}$ innerhalb der betrachteten Struktur bestimmte Zustände auftreten. Die ZPK für ein Schnittbild mit der Mikrostrukturfunktion $M(\mathbf{x}, h_i)$ und dem Zustand h_i aller möglichen Zustände H ($h_i \in H$) an der Stelle \mathbf{x} im Gebiet A_F lässt sich über den Zusammenhang

$$f_2(h_1, h_2) = \frac{1}{A_F} \int_{A_F} M(\mathbf{x}, h_1) M(\mathbf{x} + \mathbf{r}, h_2) dA \quad (5.55)$$

berechnen, wobei \mathbf{r} für alle im Gebiet möglichen Vektoren steht. Diese Berechnung beschreibt eine Faltung, welche im Fourieraum einer Multiplikation der Mikrostrukturfunktionen entspricht und mit Hilfe einer schnellen Fouriertransformation (FFT) effizient berechnet werden kann [333–336, 341, 342].

Für die Analyse von Simulationsergebnissen und Schliffbildern wird die diskrete Darstellung verwendet, bei der jede Zelle s aller Zellen S in A ($s \in S$) genau einen Zustand h_i annehmen kann. Als Zustand wird der Phasenindex einer Zelle verwendet. Die diskrete Mikrostrukturfunktion $m_s^{h_i}$ beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass die Zelle s den Zustand h_i annimmt und hat entweder den Wert 0 oder 1, da es sich um eine Eigen-Mikrostruktur handelt [342]. Die ZPK eines diskreten Feldes lässt sich daher als

$$f_2(h_1, h_2) = \frac{1}{S} \sum_{s=1}^S m_{s+\mathbf{r}}^{h_1} m_s^{h_2} \quad (5.56)$$

berechnen.

Für ein Material mit drei Festphasen ergeben sich somit neun mögliche Zweipunktkorrelationen. Diese ZPK sind drei Autokorrelationen und sechs Kreuzkorrelationen. Eine Autokorrelation $f_2(h_i, h_i)$ entspricht der Korrelation einer Phase mit sich selbst. Sie ist punktsymmetrisch, da die Multiplikation kommutativ ist. Das Maximum der Autokorrelation befindet sich bei r_{00} , d.h. wenn der Abstandsvektor \mathbf{r} gleich dem Nullvektor ist. Der Wert der Korrelation für diesen Vektor ist der Phasenanteil der betrachteten Phase in der Mikrostruktur. Die Werte für große Vektoren entsprechen näherungsweise der Quadratwurzel der jeweiligen Phasenfraktionen. Eine Kreuzkorrelation $f_2(h_i, h_j)$ mit $i \neq j$ entspricht der Korrelation zweier unterschiedlicher Phasen miteinander. Wegen der Kommutativität der Multiplikation ist $f_2(h_i, h_j)$ gleich der um π gedrehten Korrelation $f_2(h_j, h_i)$. Beim Vektor r_{00} befindet sich ein Minimum der Korrelation mit dem Wert 0, da jede Zelle per Definition nur einen Phasenwert annehmen kann. Die Werte für große Vektoren entsprechen näherungsweise dem Produkt der beiden Phasenanteile. Wie in [343] gezeigt, sind aber nur jeweils zwei dieser Korrelationen linear unabhängig.

Ein Beispiel für eine mögliche zu analysierende Mikrostruktur mit periodischen Rändern ist in Abb. 5.6 abgebildet. Die drei Phasen α , β und γ sind in rot, grün und blau dargestellt. Beispielhaft ergeben sich für die Zelle mit dem Index $s = 8$ und der Phase β die Mikrostrukturfunktionen $m_8^\alpha = 0$, $m_8^\beta = 1$ und $m_8^\gamma = 0$. Die Mikrostrukturfunktionen für die Zelle 14 mit der Phase γ sind als $m_{14}^\alpha = 0$, $m_{14}^\beta = 0$ und $m_{14}^\gamma = 1$ definiert.

1	7	13	19	25	31
2	8	14	20	26	32
3	9	15	21	27	33
4	10	16	22	28	34
5	11	17	23	29	35
6	12	18	24	30	36

Abbildung 5.6.: Beispiel für eine mögliche zu analysierende Mikrostruktur mit drei Phasen α , β und γ , dargestellt in rot, grün und blau. Die Zahlen beschreiben den Index jeder Zelle.

Für alle Zellen und alle Orientierungen des Abstandsvektors \mathbf{r} werden nach Bestimmung der Mikrostrukturfunktion die Wahrscheinlichkeiten, am Anfang und Ende des jeweiligen Vektors bestimmte Phasen zu finden, berechnet. Daraus ergeben sich die Wahrscheinlichkeiten der Autokorrelation in Abb. 5.7 (c), (g) und (k) und der Kreuzkorrelation in Abb. 5.7 (d)-(f) und (h)-(j), aufgetragen über den Richtungskomponenten des Abstandsvektors. Die roten und die blauen Pfeile (\mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2) in Abb. 5.7 sind beispielhaft eingetragen, um den Zusammenhang zwischen den Abstandsvektoren in der Mikrostruktur und in den Zweipunktkorrelationen zu verdeutlichen.

Für die konkrete Berechnung der Zweipunktkorrelationen wurden die Eigenschaften der Faltung im Fourierraum ausgenutzt, durch die sich der Rechenaufwand reduzieren lässt. Statt der

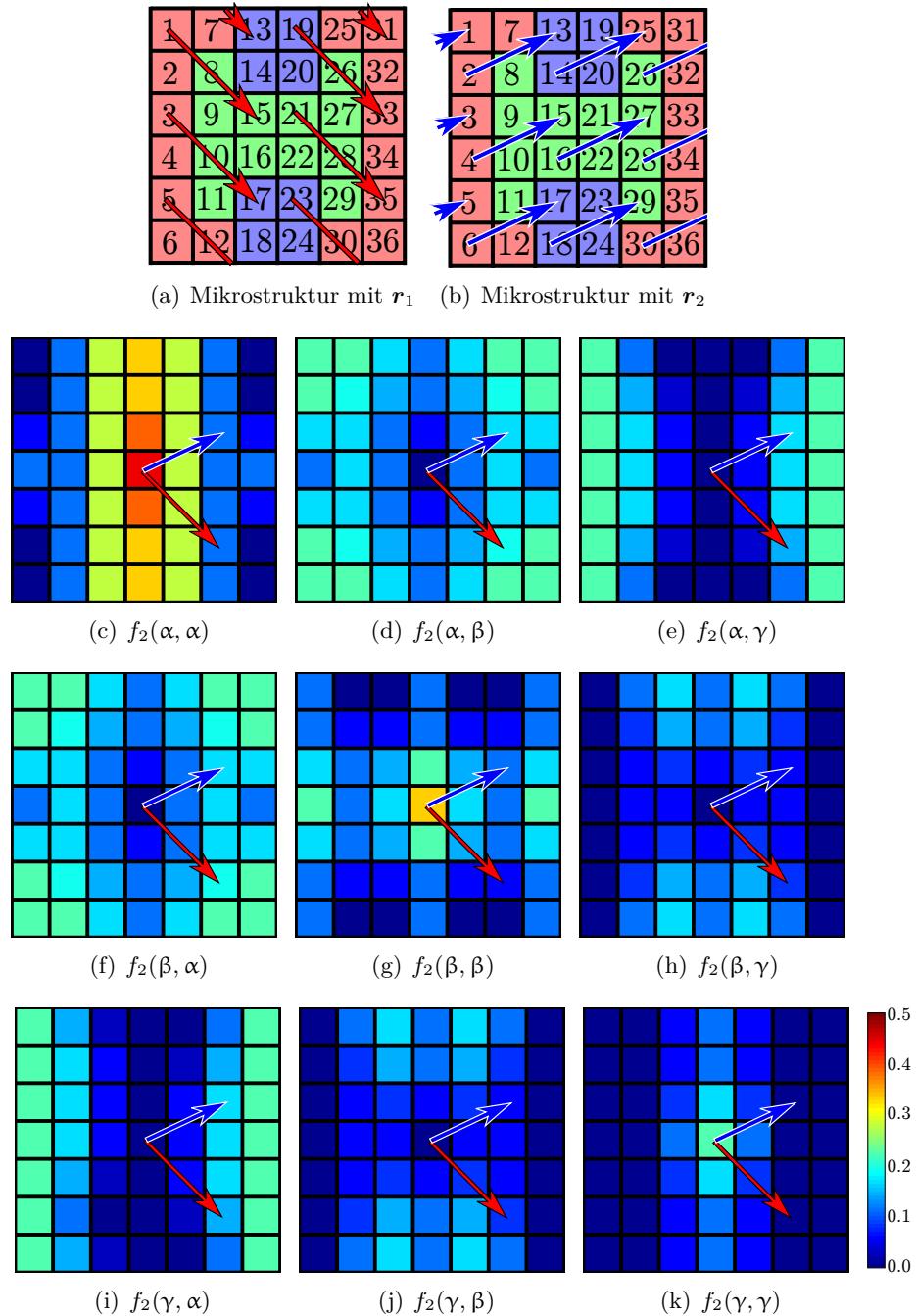


Abbildung 5.7.: In (a) und (b) ist eine Mikrostruktur und Beispiele für Abstandsvektoren r_1 und r_2 zu sehen. Die resultierenden Autokorrelationen in (c), (g) und (k) sowie die Kreuzkorrelationen der Mikrostruktur aus (a) bzw. (b) sind in (b)-(f) und (h)-(j) dargestellt. Zusätzlich sind die Abstandsvektoren r_1 und r_2 eingetragen.

Berechnung der Abstandsvektoren von jeder Zelle zu jeder Zelle werden die Mikrostrukturfunktionen im Fourierraum für alle Zellen jeweils miteinander multipliziert und anschließend die Produkte rücktransformiert. Dies erlaubt eine Reduktion des Rechenaufwandes von ca. $O(n^4)$ auf $O(n^2)$. Die größeren Vektoren in den Zweipunktkorrelationen bieten nur einen relativ geringen Informationsgehalt, da sie die Wechselwirkung über große Entfernung in der Mikrostruktur widerspiegeln. Daher können die ZPK beschnitten werden, um den Aufwand in der Analyse zu verringern. Allerdings muss für jeden Anwendungsfall geprüft werden, wie stark die Zweipunktkorrelationen beschnitten werden können.

Hauptkomponentenanalyse

Im Folgenden wird die Berechnung der Hauptkomponentenanalyse basierend auf den zuvor bestimmten Zweipunktkorrelationen gezeigt. Die Definitionen stammen aus [344–346]. Die Hauptkomponentenanalyse ist eine Faktorenanalyse auf Basis der Kovarianz- oder Korrelationsmatrix, die eine Datenreduktion ermöglicht [333–336]. Die berechneten Faktoren (PC-Werte) sind linear unabhängig und bilden sukzessive die maximale Varianz ab, d.h. der erste PC-Wert enthält den größten Informationsgehalt, der zweite den zweitgrößten usw. Daher kann für viele Anwendungsfälle mit einer relativ geringen Anzahl skalarer PC-Werte, ein großer Teil der Informationen der betrachteten Mikrostruktur erfasst werden. Die Hauptkomponentenanalyse entspricht der Abbildung in ein neues Koordinatensystem, das die Stärke der Varianz aufklärt.

Zur Projektion wird zunächst die Kovarianzmatrix COV für eine bestimmte Zweipunktkorrelation aller betrachteten Mikrostrukturen berechnet.

Die Werte der Kovarianzmatrix mit den Indizes k und l lassen sich aus

$$COV_{k,l} = \frac{1}{J-1} \sum_{j=1}^J \left((f_{2,k})_j - \frac{1}{J} \sum_{m=1}^J (f_{2,k})_m \right) \left((f_{2,l})_j - \sum_{m=1}^J (f_{2,l})_m \right) \quad (5.57)$$

berechnen. Dabei ist $(f_{2,i})_j$ der Wert einer bestimmten Zweipunktkorrelation $f_{2,i}$ für den Vektor i der Mikrostruktur j aller Mikrostrukturen J ($j \in J$).

Für die Matrix COV wird anschließend eine Singulärwertzerlegung durchgeführt. Da die Kovarianzmatrix symmetrisch und positiv-semidefinit ist, sind die Singulärwerte gleich den Eigenwerten. Somit kann die Singulärwertzerlegung in der Hauptkomponentenanalyse durch eine Eigenwert- und Eigenvektorzerlegung durchgeführt werden. Nach der Normierung der Eigenvektoren erfolgt eine Zentrierung der Zweipunktkorrelationen um den Mittelwert in der jeweiligen von den Eigenvektoren vorgegebenen Richtung. Danach werden die Zweipunktkorrelationen in den von den Eigenvektoren aufgespannten Raum projiziert. Durch die Zentrierung sind die Daten um den Koordinatenursprung des neuen Koordinatensystems verteilt.

Das Prinzip der Hauptkomponentenanalyse ist in Abb. 5.8(a) dargestellt. Dabei werden die Informationen (blaue Punkte) im ursprünglichen Koordinatensystem (x,y) in ein neues Koordinatensystem (PC1,PC2) projiziert. Die Datenreduktion in Abb. 5.8(b) ergibt sich dadurch, dass größere PC-Werte weniger Varianz abbilden und daher mit relativ geringem Informationsverlust vernachlässigt werden können.

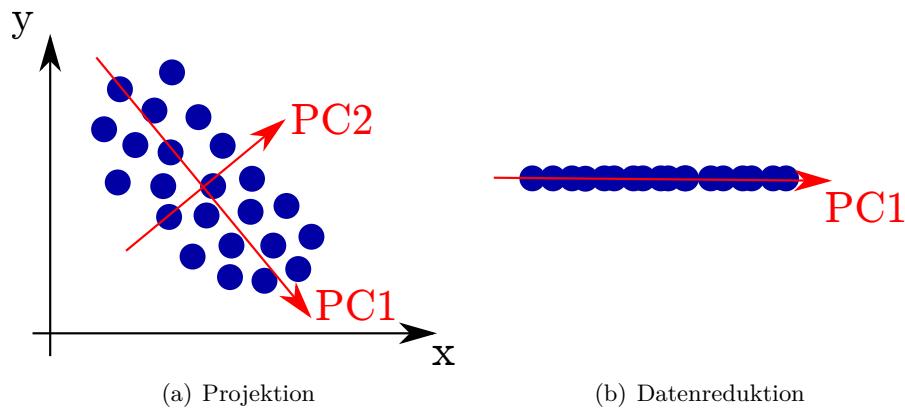


Abbildung 5.8.: (a) Prinzip der Hauptkomponentenanalyse als Projektion der Informationen (blaue Punkte) vom ursprünglichen Koordinatensystem (x,y) in ein neues Koordinatensystem (PC1,PC2) und (b) die Datenreduktion durch Vernachlässigung der Dimensionen mit geringerer Varianz.

Die Anzahl der notwendigen PC-Werte muss für jeden Anwendungsfall neu bestimmt werden. Weiterhin haben die neuen PC-Achsen keine direkte physikalische Bedeutung mehr, was eine Interpretation der Ergebnisse schwierig gestalten kann.

6. Ideales System

Im folgenden Kapitel werden Ergebnisse zur Musterbildung während der Erstarrung eines idealen ternären eutektischen Systems vorgestellt und diskutiert. In einem ternären eutektischen System stehen bei einer definierten Konzentration und Temperatur drei Festphasen und eine flüssige Phase im Gleichgewicht. Während der Erstarrung entstehen bei dieser Konzentration der Schmelze drei Festphasen, die sich in einer großen Vielfalt unterschiedlicher Muster anordnen. Aus geometrischen Überlegungen heraus postulieren Ruggiero und Rutter in [244] die Existenz von fünf verschiedenen Arten von Mikrostrukturmustern in Ebenen parallel zur Erstarrungsfront, welche graphisch von Lewis et al. in [245] dargestellt werden. Diese Strukturen sind schematisch in Abb. 6.1 abgebildet und bestehen aus drei Lamellen, zwei Lamellen und einer Faser, einer Lamelle und zwei Fasern, zwei Fasern, eingebettet in eine Matrix, sowie drei Fasern.

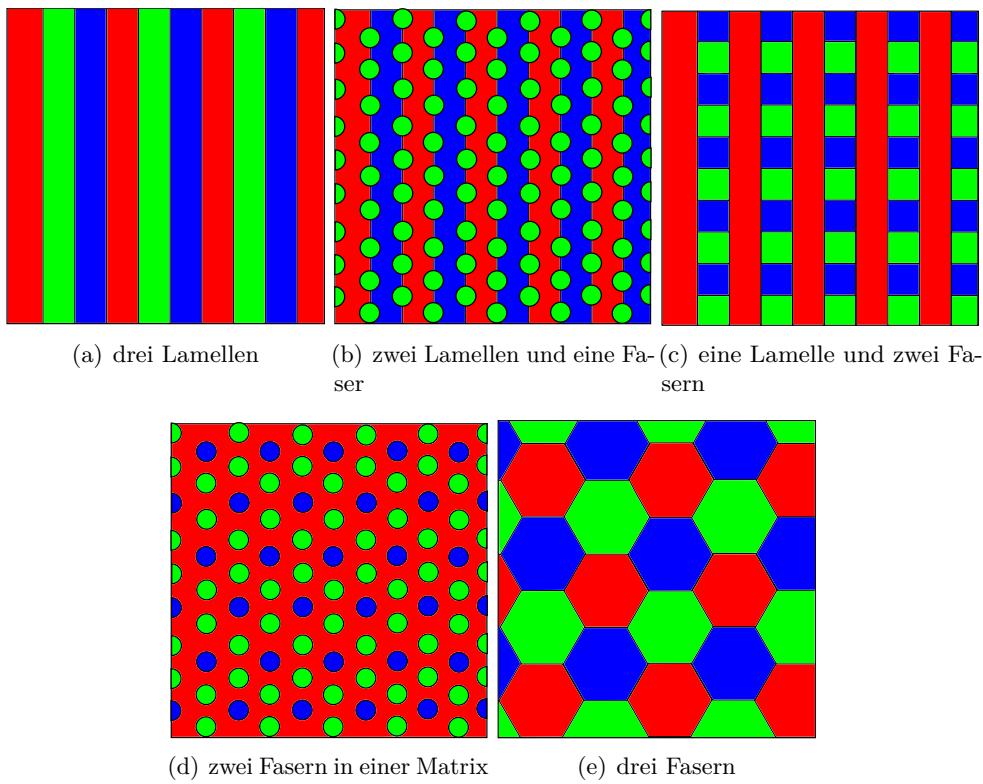


Abbildung 6.1.: Schematische Darstellung der von Ruggiero und Rutter [244] vorhergesagten Mikrostrukturen in Schnitten senkrecht zur Wachstumsrichtung von gerichtet erstarrten ternären eutektischen Legierungen. Die Abbildung ist angelehnt an eine Darstellung in [245].

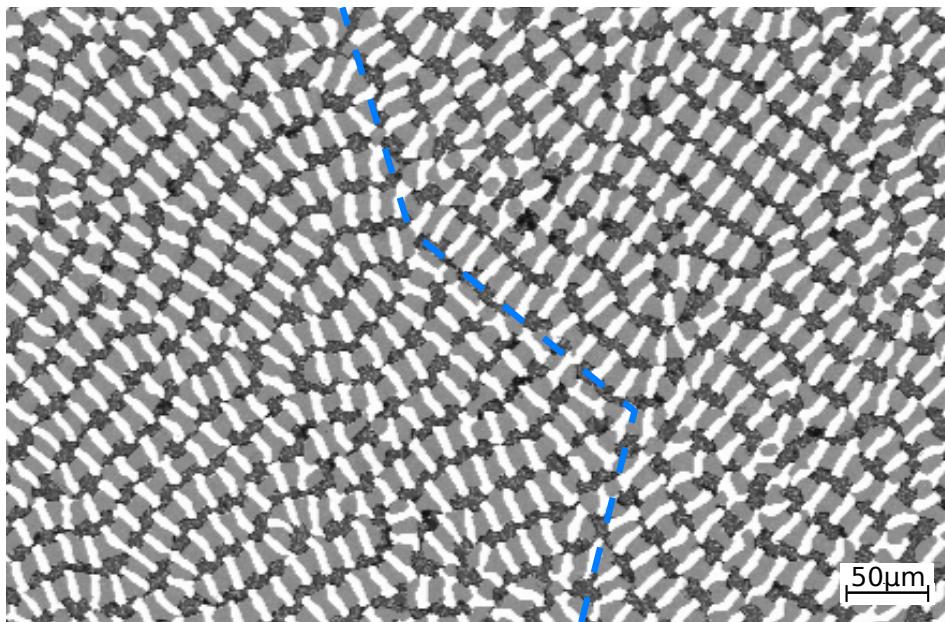


Abbildung 6.2.: Experimentelles Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront einer gerichtet erstarrten, ternären eutektischen Al-Ag-Cu-Legierung mit einer Wachstums geschwindigkeit von $0.2 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von 2.2 K/mm . Die Übergangs zonen, an denen verschiedene ausgerichtete Kettenstrukturen interagieren, sind mit einer blauen gestrichelten Linie hervorgehoben. Das Experiment wurde am Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Köln von Dr. A. Dennstedt durchgeführt. Diese Abbildung ist angelehnt an eine Darstellung in [71].

In experimentellen Schliffbildern zeigt sich allerdings eine deutlich größere Vielfalt der entstehenden Mikrostrukturen [14–18] als von Ruggiero und Rutter [244] vorhergesagt. Ein Beispiel hierfür ist in dem Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront von gerichtet erstarrtem Al-Ag-Cu in Abb. 6.2 dargestellt, in dem sich verzweigte Kettenstrukturen ausgebildet haben. Die Probe ist mit einer Wachstumsgeschwindigkeit von $0.2 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von 2.2 K/mm erstarrt. Mit einer blauen gestrichelten Linie ist zusätzlich eine typische Übergangszone hervorgehoben, welche sich als Übergangsbereich zwischen verschiedenen ausgerichteten Kettenstrukturen bildet. Der Einfluss dieser Übergangsbereiche auf die Mikrostrukturentwicklung wurde bisher nicht untersucht.

Aufgrund der komplexen Mikrostrukturanordnungen ist zusätzlich der Einfluss durch den Simulationsaufbau wie die Gebietsgröße, die Randbedingungen und die initiale Mikrostruktur auf die entstehende Mikrostruktur im realen System schwierig zu quantifizieren. Für ein ideales ternäres eutektisches System mit einem symmetrischen Phasendiagramm wird das Entstehen einer hexagonalen Anordnung der drei Festphasen in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront für eine zufällig gesetzte initiale Mikrostruktur, ähnlich wie in Abb. 6.1(e), erwartet [66, 245, 270, 310, 347]. Dieses definierte Muster erlaubt eine Quantifizierung des Einflusses durch den Simulationsaufbau. Durch das Vorgeben einer definierten initialen Mikrostruktur kann zusätzlich auch die Stabilität weiterer Muster untersucht werden.

In diesem Kapitel wird zunächst eine Jackson-Hunt-Analyse [240] für verschiedene zwei- und dreidimensionale Muster in dem idealen ternären eutektischen System durchgeführt. Dabei werden die lamellaren Abstände und die Erstarrungsgeschwindigkeiten systematisch variiert und die sich entwickelnden Unterkühlungen unter die Temperatur des ternären eutektischen Punktes gemessen. Diese Ergebnisse werden mit den in Abschnitt 5.3 vorgestellten analytischen Ansätzen HU1999 [253], CPN2011 [270] und $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ [327] verglichen und dienen zur Validierung des verwendeten Phasenfeldmodells (siehe Kapitel 3).

Daran anschließend wird eine numerische Jackson-Hunt-Analyse [240] für ein hexagonales Muster durchgeführt, weil für diese Art von Mikrostruktur keine analytischen Ansätze publiziert sind. Mit dieser Analyse lässt sich der lamellare Abstand λ_{JH} bestimmen bei dem die Frontunterkühlung minimal wird. Aus diesem Abstand lassen sich Abschätzungen für die minimal notwendige Basis-Größe bestimmen, da durch die physikalisch vorgegebene Periodenlänge das System eine definierte Größe der Fasern anstrebt. Daraus resultierend muss sich die Anzahl und Form der Fasern abhängig von der Basis-Größe anpassen und kann nicht einfach skalieren.

Dieses Vorgehen erlaubt zwar eine Abschätzung der minimal notwendigen Basis-Größe, um die vom System angestrebte Fasergröße zu erreichen, allerdings wurde in [70] die Unzulänglichkeit dieses Vorgehens zur Bestimmung statistischer Volumenelemente für verschiedene Datensätze ternärer eutektischer Legierungen gezeigt. Daher wird in diesem Kapitel die Basis-Größe systematisch variiert und der Einfluss der Randbedingungen quantifiziert. Die benötigte Gebietsgröße für statistische Volumenelemente wird als Vielfaches von λ_{JH} ausgedrückt, um eine Vergleichbarkeit mit anderen Systemen zu ermöglichen. Durch eine systematische Variation der initialen Mikrostruktur wird anschließend die Stabilität der entstehenden Muster analysiert.

Basierend auf den Ergebnissen für die Bestimmung der notwendigen Basis-Größe und der Untersuchung der Stabilität der Muster wird gezeigt, dass selbst für ein ideales ternäres eutektisches System der Musterbildungsprozess komplexer ist, als theoretisch vorhergesagt. Abschließend werden die entstehenden Muster in großskaligen Simulationen sowie die Bildung und Entwicklung von Übergangszonen, ähnlich wie in Experimenten (siehe Abb. 6.2), untersucht.

6.1. Verwendete Simulationsparameter

Der in diesem Kapitel verwendete Parametersatz bildet ein ideales ternäres eutektisches System, bei dem die Phasenfraktionen, die Konzentrationen der drei Komponenten in der Schmelze, die Grenzflächenenergien und die Diffusionskoeffizienten jeweils gleichgesetzt werden ab. Für die Berechnung der treibenden Kraft und die Festlegung der Gleichgewichtskonzentrationen werden Gibbs-Energien der drei Festphasen verwendet, die im gleichmäßigen Abstand auf dem Konzentrationssimplex um die Gibbs-Energie der flüssigen Phasen verteilt sind, welche sich im Zentrum des Simplex befindet. Ein Überblick über die verwendeten Simulationsparameter ist in Tabelle 6.1 dargestellt. In den in diesem Kapitel gezeigten Schnittbildern ist die Phase α in rot, die Phase β in grün und γ in blau dargestellt. Da die Geschwindigkeit des Temperaturgradienten bei der Jackson-Hunt-Analyse systematisch variiert wird, ist sie in den

entsprechenden Abschnitten direkt angegeben. Dieser Parametersatz wird ebenfalls in [71] und [327] verwendet.

Tabelle 6.1.: Zusammenfassung der verwendeten Simulationsparameter, die ebenfalls in [71] und [327] genutzt werden.

Parameter	Simulationswert
<i>Numerische Parameter</i>	
dx	1.0
dt	0.03
τ	Phase $\alpha \quad \beta \quad \gamma \quad liq$ $\alpha \quad - \quad 2.0 \quad 2.0 \quad 1.0$ $\beta \quad 2.0 \quad - \quad 2.0 \quad 1.0$ $\gamma \quad 2.0 \quad 2.0 \quad - \quad 1.0$ $liq \quad 1.0 \quad 1.0 \quad 1.0 \quad -$
ϵ	4.0
<i>Physikalische Parameter</i>	
γ	Phase $\alpha \quad \beta \quad \gamma \quad liq$ $\alpha \quad - \quad 0.2 \quad 0.2 \quad 0.2$ $\beta \quad 0.2 \quad - \quad 0.2 \quad 0.2$ $\gamma \quad 0.2 \quad 0.2 \quad - \quad 0.2$ $liq \quad 0.2 \quad 0.2 \quad 0.2 \quad -$
D	5.0
c_{liq}	A: $0.\bar{3}$, B: $0.\bar{3}$, C: $0.\bar{3}$
Phasenfraktionen	α : $0.\bar{3}$, β : $0.\bar{3}$, γ : $0.\bar{3}$
$\Xi_\alpha, \xi_\alpha, X_\alpha$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.8 \\ -2.0 \end{bmatrix}, 1.04$
$\Xi_\beta, \xi_\beta, X_\beta$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.0 \\ -2.8 \end{bmatrix}, 1.04$
$\Xi_\gamma, \xi_\gamma, X_\gamma$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -1.2 \\ -1.2 \end{bmatrix}, 0.24$
$\Xi_{liq}, \xi_{liq}, X_{liq}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.0 \\ -2.0 \end{bmatrix}, 3.0 - 2\bar{.}6T$
<i>Prozessparameter</i>	
T_E	1.0
G	10^{-4}

Das aus den Gibbs-Energien resultierende Phasendiagramm des idealen ternären eutektischen Systems ist in Abb. 6.3 dargestellt. Ausgehend von den Eckpunkten des Simplex fällt die Liquidusfläche bis zum ternären eutektischen Punkt bei der Konzentration $A = 0.\bar{3}$, $B = 0.\bar{3}$, $C = 0.\bar{3}$ und der Temperatur $T_E = 1.0$. Durch die Modellierung des Systems sind die Gleichgewichtskonzentrationen unterhalb der eutektischen Temperatur konstant. In rot ist eines der drei binären eutektischen Randsysteme hervorgehoben. Zusätzlich sind isotherme Schnitte, oberhalb der ternären eutektischen Temperatur bei $T = 1.04$, in der Nähe von T_E ($T = 1.001$) und unterhalb von T_E ($T = 0.96$) abgebildet.

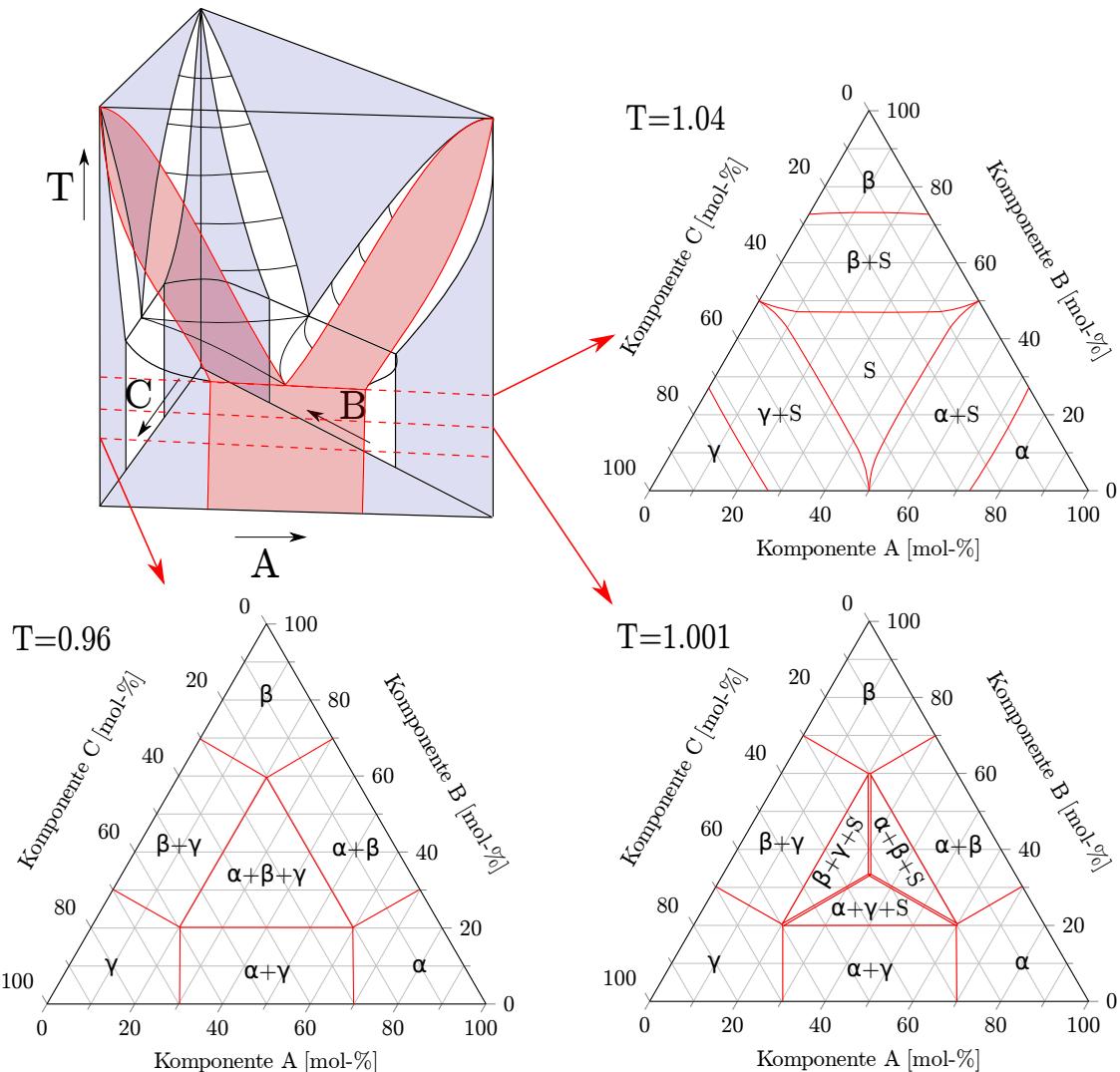


Abbildung 6.3.: Phasendiagramm des idealen ternären eutektischen Systems, das aus den Gibbs-Energien in Tabelle 6.1 berechnet wurde. Zusätzlich sind isotherme Schnitte bei unterschiedlichen Temperaturen dargestellt.

6.2. Quantitativer Vergleich zwischen Simulation und Analytik

Zur Validierung des Modells werden im Folgenden die Ergebnisse von 2D- und 3D-Phasenfeldsimulationen mit dem idealen ternären eutektischen System vorgestellt und mit analytischen Ergebnissen von HU1999 [253], CPN2011 [270] und dem in Abschnitt 5.3 vorgestellten Ansatz HU_{gleiches} ΔT verglichen. Für die Simulationen werden zwei- und dreidimensionale Anordnungen mit den initialen Mikrostrukturen $\alpha - \beta - \gamma$ und $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$ sowie dreidimensionale Muster mit Kettenstrukturen verwendet, ähnlich wie sie auch in Abb. 6.2 abgebildet sind. Neben den Mustern werden die lamellaren Abstände systematisch für drei Erstarrungsgeschwindigkeiten $v_1 = 1.06 \cdot 10^{-3}$, $v_2 = 2.12 \cdot 10^{-3}$ und $v_3 = 4.24 \cdot 10^{-3}$ in Zellen pro Zeitschritt variiert und die resultierenden Unterkühlungen unter die ternäre eutektische Temperatur gemessen.

Die 2D-Simulationen und der Vergleich mit CPN2011 rekapitulieren die Arbeit von [270], bei dem ein auf dem Funktional der Freien Energie basierendes Phasenfeldmodell verwendet wurde. Im Gegensatz zu CPN2011 entsteht in dem in dieser Arbeit verwendeten Phasenfeldmodell (siehe Kapitel 3) von [36–38] keine Zusatzenergie in der Grenzfläche, die zu unphysikalischen Ergebnissen führen kann, wie in [37] gezeigt. Wegen der entstehenden Zusatzenergie mussten für den Vergleich der 2D Phasenfeldsimulationen mit der Analytik in [270] die effektiven Grenzflächenenergien in den Simulationen basierend auf den Simulationsparametern kalibriert werden. Diese Anpassung an die Analytik ist in dem in dieser Arbeit verwendeten Modell nicht mehr notwendig.

6.2.1. Jackson-Hunt-Analyse für die Anordnungen $\alpha - \beta - \gamma$ und $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$

Wie in der eingebetteten Darstellung in Abb. 6.4 gezeigt, wachsen die drei Lamellen mit der Phasenanordnung $\alpha - \beta - \gamma$ in jeder Simulation mit einem definierten lamellaren Abstand λ gleichzeitig nebeneinander. Der lamellare Abstand λ wurde in Schritten von 5 Zellen von 30 bis 100 Zellen für die drei Geschwindigkeiten v_1 , v_2 und v_3 variiert.

Analog zu [270] treten dabei verschiedene Wachstumsmodi wie z. B. Oszillation, stationäres Wachstum und Überwachsen von Lamellen in Abhängigkeit vom lamellaren Abstand auf. Für die Geschwindigkeit v_2 wird eine der Phasen für $\lambda \leq 30$ Zellen überwachsen. Im Bereich von 35 bis 80 Zellen tritt stationäres lamellares Wachstum auf und für größere λ oszillieren die Phasenbreiten.

In Abb. 6.4 sind die konvergierten Unterkühlungen der 2D-Simulationen über dem lamellaren Abstand für die drei verschiedenen Geschwindigkeiten mit schwarzen Punkten aufgetragen. Der Verlauf der Punkte zeigt den von Jackson und Hunt [240] vorhergesagten Verlauf mit Kurven der Form

$$\Delta T = A\lambda + \frac{B}{\lambda} \quad (6.1)$$

mit einem Minimum der Unterkühlung bei λ_{JH} . Die Parameter A und B in Gl. (6.1) sind materialabhängige Konstanten.

Die Ergebnisse des analytischen Ansatzes von CPN2011 sind als blaue Kurven dargestellt. Für die Geschwindigkeiten v_1 und v_2 zeigt sich eine gute quantitative Übereinstimmung zwischen den Simulationen und der Analytik. Für die Geschwindigkeit v_3 , welche vier mal so groß

wie v_1 ist, sind die Unterschiede der Verläufe, verglichen mit den Ergebnissen von v_1 und v_2 , größer. Dieses Verhalten, dass mit zunehmender Geschwindigkeit der Unterschied zwischen den Simulationen und der Analytik größer wird, wurde ebenfalls in [270] beobachtet. Es kann mit einer größeren Abweichung vom thermodynamischen Gleichgewicht und den Annahmen in der Analytik, wie etwa einer planaren Erstarrungsfront, erklärt werden [152, 304].

Die maximale Abweichung in den Unterkühlungen zwischen den Simulationen und CPN2011 bezogen auf den jeweiligen analytischen Wert beträgt 13.1 % für die Geschwindigkeit v_1 , 3.4 % für v_2 und 8.3 % für v_3 . Mit einer maximalen Abweichung von 8.9 % für den lamellaren Abstand bei minimaler Unterkühlung λ_{JH} sowie 6.4 % für die entsprechende Unterkühlung weisen die Ergebnisse der Simulationen für die Geschwindigkeiten v_1 und v_2 eine gute Übereinstimmung mit den analytischen Ergebnissen von CPN2011 auf. Von HU1999 ist keine analytische Lösung für dieses Muster veröffentlicht worden.

Zusätzlich wurden Simulationen mit der Erweiterung der zweidimensionalen Phasenanordnung in 3D durchgeführt. Dazu wurde der zweidimensionale Simulationsaufbau in die dritte Dimension zu einer quadratischen Basis-Größe erweitert. Die Unterkühlungen der 3D-Simulationen sind in Abb. 6.4 mit orangen Symbolen dargestellt. Da diese dreidimensionalen Simulationen auf 2D-Muster zurückgeführt werden können, liegen die Abweichungen zu den korrespondierenden zweidimensionalen Simulationen in der Größe der Maschinengenauigkeit.

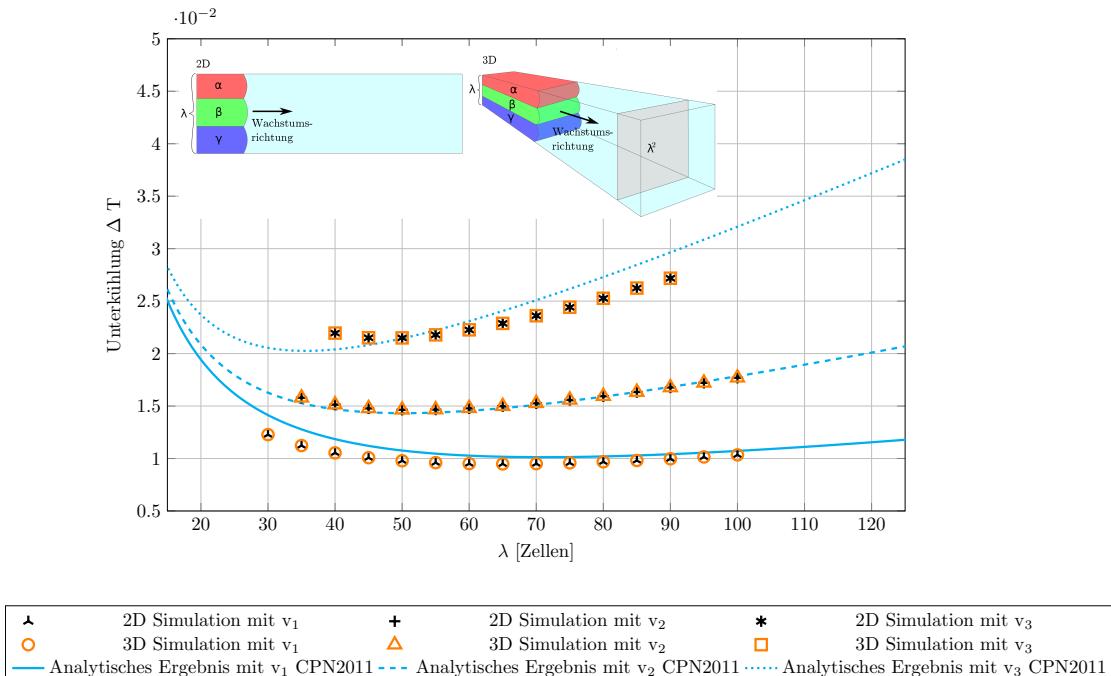


Abbildung 6.4.: Plot der durchschnittliche Frontunterkühlung über dem lamellaren Abstand für die Anordnung $\alpha - \beta - \gamma$ und drei verschiedene Geschwindigkeiten v_1 , v_2 und v_3 . Die Unterkühlungen aus den 2D-Simulationen sind mit schwarzen Punkten und die der 3D-Simulationen mit orangen Symbolen markiert. Die analytischen Ergebnisse von CPN2011 für die drei Geschwindigkeiten v_1 bis v_3 sind durch blaue Linien markiert. Zusätzlich sind die Phasenanordnungen der 2D- und 3D-Simulationen in der eingebetteten Abbildung dargestellt.

In der nächsten Simulationsserie wird die Abhängigkeit der Unterkühlung vom lamellaren Abstand und der Erstarrungsgeschwindigkeit für die Phasenordnung $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$ untersucht, wie in der eingebetteten Darstellung in Abb. 6.5 gezeigt. Diese Lamellenordnung wird in experimentellen Schliffbildern parallel zur Wachstumsrichtung u.a. bei den eutektischen Systemen Al-Ag-Cu [24] und In-Bi-Sn [236, 348] beobachtet. In den Simulationen mit dem idealen ternären eutektischen System wird die Breite der beiden α -Lamellen halb so groß wie die β - und die γ -Lamelle gesetzt. Für einen quantitativen Vergleich mit den analytischen Ansätzen von HU1999 und CPN2011 werden die gemessenen konvergierten Unterkühlungen genutzt. Die Ergebnisse dieses Abschnittes sind ebenfalls in [327] beschrieben.

Ähnlich wie für die Anordnung $\alpha - \beta - \gamma$ treten während des Wachstums verschiedene Wachstumsmodi (Oszillation, stationäres Wachstum und Überwachsen) abhängig von dem lamellaren Abstand und der Geschwindigkeit auf.

Die durchschnittliche Frontunterkühlung der 2D-Simulationen ohne Überwachsen über dem lamellaren Abstand ist in Abb. 6.5 mit schwarzen Symbolen aufgetragen. Der Verlauf der Unterkühlungen, in Abhängigkeit vom lamellaren Abstand und der Geschwindigkeit, zeigt ein Verhalten vom Jackson-Hunt-Typ [240] (siehe Gl. (6.1)). Die Ergebnisse des analytischen Ansatzes von CPN2011 sind in Abb. 6.5 in blau aufgetragen und die Ergebnisse von HU1999 sind als grüne Kurven geplottet.

Die berechneten Unterkühlungen von HU1999 sind höher als die Werte der Analytik von CPN2011. Allerdings beträgt Unterschied der jeweiligen λ_{JH} maximal 2.18 Zellen für alle drei untersuchten Geschwindigkeiten. Für HU1999 stellt sich die maximale Abweichung in der Unterkühlung zwischen den Simulationen und der Analytik, bezogen auf die jeweiligen analytischen Werte bei $\lambda = 60$ für die Geschwindigkeit v_3 , mit 10.2 % ein. Der maximale Unterschied für CPN2011 tritt mit 8.5 % bei $\lambda = 100$ ebenfalls für die Geschwindigkeit v_3 auf. Für die betrachteten lamellaren Abstände liegen die Unterkühlungen der Simulationen im Allgemeinen zwischen den beiden analytischen Kurven. Bei den λ_{JH} 's beträgt der Unterschied für die Geschwindigkeit v_2 , bezogen auf die jeweiligen analytischen Werte, für CPN2011 3.7 % und für HU1999 5.7 %.

Somit befinden sich die Simulationsergebnisse für die Geschwindigkeiten v_1 und v_2 , ähnlich wie für die Anordnung $\alpha - \beta - \gamma$, in guter Übereinstimmung mit den analytisch vorhergesagten Werten. Die größeren Unterschiede für die Geschwindigkeit v_3 können mit den Annahmen in der Analytik und der Abweichung vom thermodynamischen Gleichgewicht erklärt werden [152, 304].

Zur Überprüfung der zweidimensionalen Simulationsergebnisse wurde zusätzlich eine Erweiterung der 2D-Simulationen auf 3D mit einer quadratischen Basis-Größe durchgeführt. Wie erwartet, sind die Abweichungen in den Frontunterkühlungen zu den korrespondierenden zweidimensionalen Simulationen in der Größe der Maschinengenauigkeit. Ihre Werte sind in Abb. 6.5 mit orangen Symbolen dargestellt.

Für beide lamellare Anordnungen $\alpha - \beta - \gamma$ und $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$ zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen den Simulationen und der Analytik. Diese Ergebnisse veranschaulichen die Fähigkeit des Modells, welches auf der Differenz der Großkanonischen Potentiale basiert, die analytisch vorhergesagten Unterkühlungen quantitativ korrekt abzubilden.

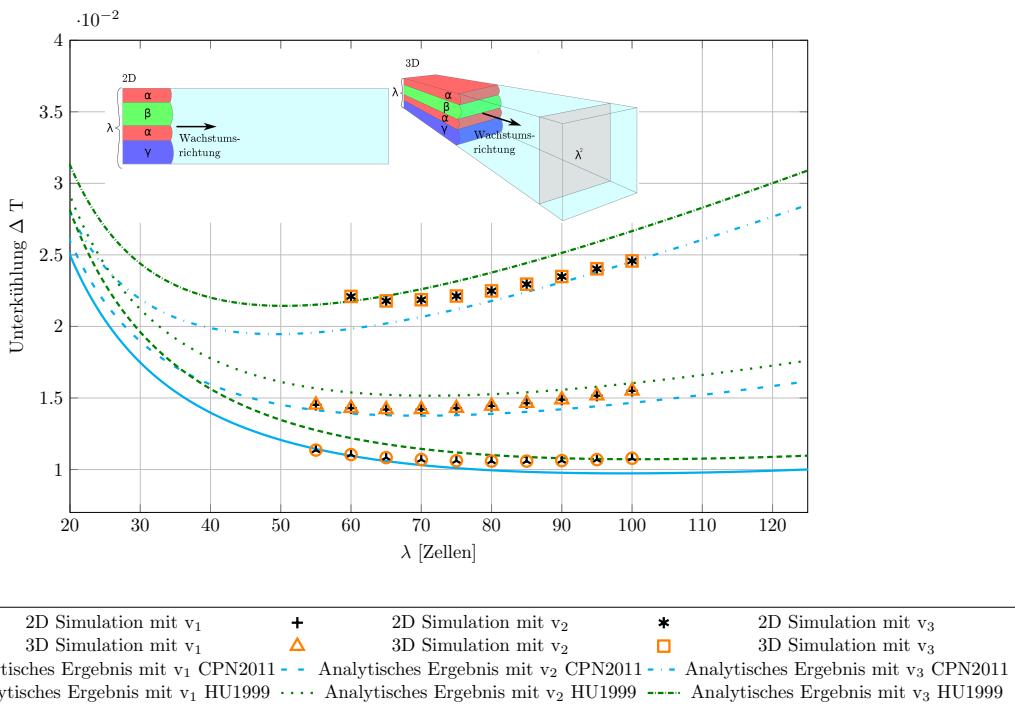


Abbildung 6.5.: Plot der durchschnittlichen Frontunterkühlung über dem lamellaren Abstand für die Anordnung $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$ und drei verschiedene Geschwindigkeiten v_1 , v_2 und v_3 . Die Unterkühlungen aus den 2D-Simulationen sind mit schwarzen Punkten und die der 3D-Simulationen mit orangen Symbolen eingetragen. Die analytischen Vorhersagen von CPN2011 sind in blau abgebildet und die Ergebnisse der Analytik von HU1999 sind als grüne Kurven eingetragen. Zusätzlich sind die Phasenanordnungen der 2D- und 3D-Simulationen in der eingebetteten Abbildung dargestellt. Die Abbildung basiert auf einem Diagramm in [327].

6.2.2. Jackson-Hunt-Analyse in 3D für ein Kettenmuster

Bei den beiden im vorherigen Abschnitt untersuchten Mustern mit den Phasenanordnungen $\alpha - \beta - \gamma$ und $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$ handelt es sich um zweidimensionale Muster bzw. Anordnungen, die auf 2D-Muster zurückgeführt werden können. Im folgenden Abschnitt wird die sich einstellende Unterkühlung einer dreidimensionalen Phasenanordnung als Kettenstruktur untersucht. Die gemessenen Frontunterkühlungen der 3D-Simulationen des idealen ternären eutektischen Systems werden mit analytischen Ansätzen von HU1999 und $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ verglichen. Da von CPN2011 keine analytischen Lösungen für 3D-Muster publiziert sind, wurde, wie in Abschnitt 5.3 beschrieben, $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ als Erweiterung von CPN2011 hergeleitet.

In der Literatur sind nur für eine geringe Anzahl von dreidimensionalen Mikrostrukturmustern analytische Lösungen publiziert. Eine dieser Strukturen sind Kettenstrukturen. Da dieses Muster in experimentellen Schnittbildern von Al-Ag-Cu parallel zur Erstarrungsfront [15–17, 22] beobachtet wird, wie beispielhaft in Abb. 6.2 dargestellt, wird es im Folgenden untersucht.

Für die Modellierung des Musters wird die initiale Mikrostruktur mit Kettengliedern der Phasen β und γ in eine Matrix der Phase α gesetzt, was in der Phasenanordnung des eingebetteten Bildes in Abb. 6.6 resultiert. Da es sich um ein dreidimensionales Muster handelt, müssen zwei lamellare Abstände unterschieden werden. Der erste Abstand λ_1 ist die periodische Länge senkrecht zur Kettenrichtung und λ_2 ist in Kettenrichtung definiert. Die Ergebnisse dieses Abschnittes über Kettenmuster sind ebenfalls in [327] beschrieben.

Einfluss der Wachstumsgeschwindigkeit bei einer quadratischen Basis-Größe

Für die erste Simulationsserie mit der Kettenstruktur wird angenommen, dass $\lambda = \lambda_1 = \lambda_2$ ist. Dies resultiert in quadratischen Basis-Größen, die von 30×30 bis 100×100 Zellen mit einer Schrittgröße von 5 Zellen variiert werden. Durch die Simulation unterschiedlicher Basis-Größen für v_1 , v_2 und v_3 wird der Einfluss der Wachstumsgeschwindigkeit und des lamellaren Abstandes auf die Unterkühlung untersucht.

Die Unterkühlungen der beiden analytischen Ansätze $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ und $HU1999$ sind als blaue und grüne Kurven in Abb. 6.6 über dem lamellaren Abstand λ aufgetragen. Beide Analytiken sagen ein ähnliches Verhalten für die untersuchten Geschwindigkeiten und die lamellaren Abstände voraus. Im Gegensatz zu den analytischen Ansätzen beim Muster $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$ treten allerdings Schnittpunkte für die Kurven mit gleichen Geschwindigkeiten auf. Für alle drei Geschwindigkeiten unterscheiden sich die korrespondierenden λ_{JH} von $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ und $HU1999$ um maximal 3.7 Zellen voneinander. Die maximale Abweichung in der Unterkühlung bei diesen lamellaren Abständen beträgt 12.6 %, bezogen auf $HU1999$ für die Geschwindigkeit v_1 .

In den Simulationen kommt es ähnlich wie bei den zweidimensionalen Mustern zu Oszillationen in den Phasenbreiten und Musterumschlägen bzw. zu einem Überwachsen einzelner Phasen. Die sich einstellenden Unterkühlungen über dem lamellaren Abstand λ sind mit orangen Punkten in Abb. 6.6 dargestellt. Dabei sind nur Simulationen berücksichtigt, bei denen das initiale Kettenmuster erhalten bleibt. Die Unterkühlungen folgen annähernd dem von Jackson und Hunt [240] für zweidimensionales Wachstum binärer Eutektika vorhergesagten Verlauf aus Gl. (6.1) mit einem Tiefpunkt der Unterkühlung bei λ_{JH} .

Der maximale Unterschied in der Unterkühlung bei den jeweiligen λ_{JH} zwischen den Simulationen und $HU1999$, bezogen auf die jeweiligen analytischen Werte, beträgt 16.3 % für die Geschwindigkeit v_1 . Die größten relativen Abweichungen treten für diese Geschwindigkeit auf, da sie auf die kleinsten Absolutwerte normiert werden. Die größte relative Abweichung zwischen Simulation und $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$, bezogen auf die Analytik, an den jeweiligen λ_{JH} beträgt 7.5 % für die Geschwindigkeit v_3 . Trotz der gezeigten maximalen relativen Abweichungen bilden die Simulationen den Verlauf der analytischen Kurven für die drei unterschiedlichen Geschwindigkeiten und lamellaren Abstände dieses 3D-Kettenmusters gut ab.

Bei einer systematischen Variation der Basis-Größe zeigt sich ein ähnliches Verhalten wie bei den zweidimensionalen Simulationen. Abhängig vom lamellaren Abstand oszillieren die Phasenbreiten und es entwickeln sich unterschiedliche stabile Muster. Für kleine Gebietsgrößen treten lamellare Strukturen auf. Für größere Basis-Größen entwickeln sich Kettenstrukturen mit stationären Phasenbreiten, die dann bei einer weiteren Vergrößerung von λ^2 anfangen zu oszillieren. Bei fortgeführter Vergrößerung entstehen Übergangsmuster und schließlich findet

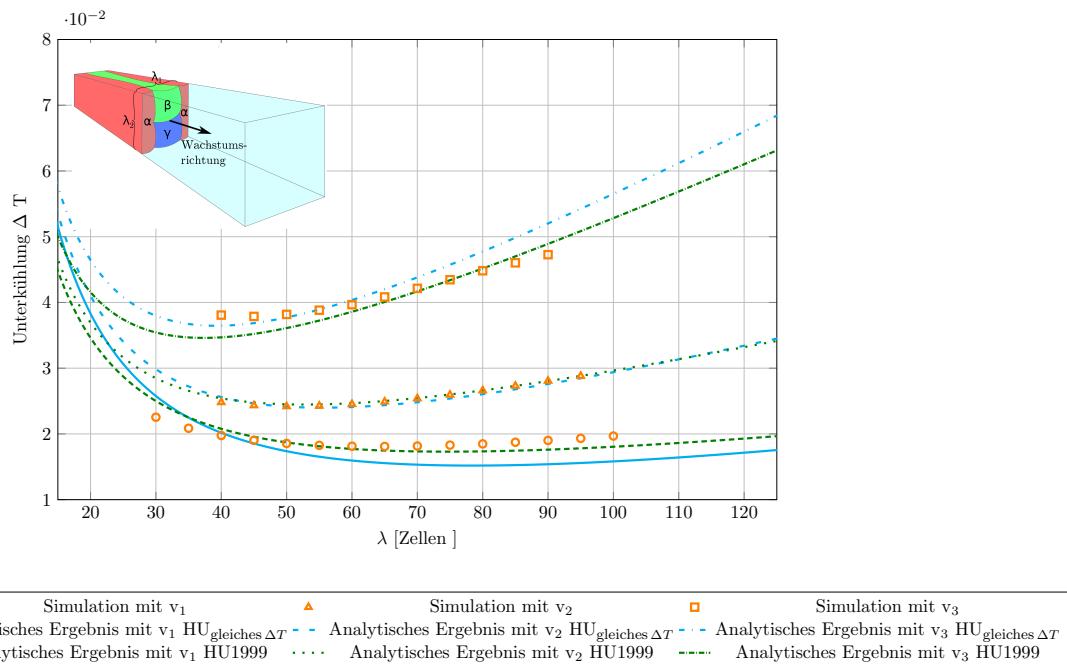


Abbildung 6.6.: Plot der durchschnittlichen Frontunterkühlung über dem lamellaren Abstand für eine Kettenstruktur mit einer quadratischen Basis-Größe und drei verschiedenen Geschwindigkeiten v_1 , v_2 und v_3 . Die Unterhüllungen der Simulationen sind mit orangen Punkten eingetragen und die analytischen Ergebnisse von HU1999 und HU_{gleiches ΔT} mit grünen und blauen Kurven dargestellt. Die Abbildung basiert auf einem Diagramm in [327].

ein Musterumschlag zu mehrfachen Kettenmustern statt. Der Prozess der Musteränderung ist beispielhaft in Abb. 6.7 für Schnittbilder mit unterschiedlichen Basis-Größen für die Geschwindigkeit v_2 dargestellt. Die drei Schnittbilder mit konstanter physikalischer Größe pro Zelle sind dabei auf die gleiche Größe skaliert worden, um die visuelle Vergleichbarkeit zu erleichtern.

Zusätzlich ist in Abb. 6.7 die konvergierte Unterhüllung der verschiedenen Muster aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Umordnung der Muster von einer Verringerung der durchschnittlichen Frontunterhüllung begleitet ist. Ein ähnliches Verhalten wurde ebenfalls in [268] für ein binäres Eutektikum beobachtet. Wie erwartet, entsprechen die durchschnittlichen Frontunterhüllungen für das umgeschlagene Kettenmuster den Werten der entsprechenden Simulationen mit der halben Basis-Größe und ohne Musterumschlag. Dies wird beispielhaft für die Unterhüllungen der Basis-Größen 110×110 und 120×120 deutlich, die gleich den Unterhüllungen der Simulationen mit den korrespondierenden Basis-Größen 55×55 und 60×60 Zellen sind.

Einfluss unterschiedlicher lamellarer Abstände

In den Simulationen des vorherigen Abschnittes wurden quadratische Basis-Größen verwendet und somit war nur die Betrachtung eines lamellaren Abstandes notwendig. In der im Folgenden

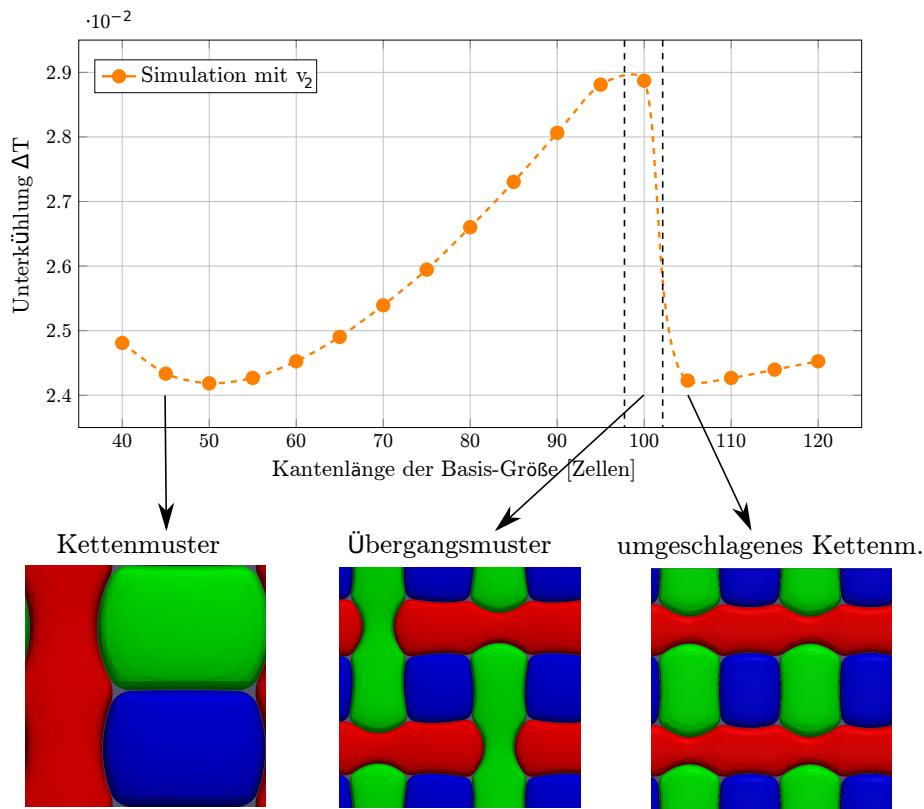


Abbildung 6.7.: Darstellung der konvergierten Frontunterkühlungen über der Kantenlänge der Basis-Größe für Kettenmuster mit einer quadratischen Basis und der Wachstumsgeschwindigkeit v_2 . Zusätzlich ist eine Auswahl entstehender Mikrostrukturen für verschiedene Gebietsgrößen dargestellt. Die drei Schnittbilder haben eine konstante physikalische Größe pro Zelle und sind auf die gleiche Bildgröße skaliert worden. Die Abbildung basiert auf einer Darstellung in [327].

gezeigten Studie wird $\lambda_1 \neq \lambda_2$ für Kettenmuster gesetzt und damit der Einfluss unterschiedlicher lamellarer Abstände auf die durchschnittliche Frontunterkühlung untersucht.

Die Unterkühlungen der analytischen Ansätze $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ und $HU1999$ sind in Abb. 6.8 (a) und (b) über den beiden lamellaren Abständen λ_1 und λ_2 für die drei Geschwindigkeiten v_1 , v_2 und v_3 in rot, grün und blau aufgetragen. Es bilden sich gekrümmte Flächen aus, die in Schnitten für λ_1 mit konstantem λ_2 und für λ_2 mit konstantem λ_1 annähernd einem Jackson-Hunt-Verlauf folgen. Ähnlich wie in den Untersuchungen mit einem lamellaren Abstand entwickelt sich ein Minimum der Unterkühlung bei λ_{JH} . Diese λ_{JH} für die unterschiedlichen Geschwindigkeiten sind mit Punkten in den Unterkühlungsflächen in Farben korrespondierend zu den entsprechenden Ebenen markiert. Zusätzlich sind ihre Projektionen auf die Grundebenen der 3D-Plots mit Punkten hervorgehoben.

Für beide analytischen Ansätze ist das Verhältnis von λ_1 zu λ_2 bei den lamellaren Abständen mit minimaler Unterkühlung konstant was durch die schwarzen Linien in den Grundflächen in Abb. 6.8 hervorgehoben ist. Die Minima folgen den Zusammenhängen $\lambda_2/\lambda_1 = 1.138$ für

HU1999 und $\lambda_2/\lambda_1 = 0.705$ für $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$. Weiterhin gilt für die Minima der Unterkühlungen, ähnlich wie in dem zweidimensionalen Ansatz für binäre Eutektika von Jackson und Hunt [240], dass $\lambda_{1,JH} \sqrt{v} = \text{konstant}$ und $\lambda_{2,JH} \sqrt{v} = \text{konstant}$ ist.

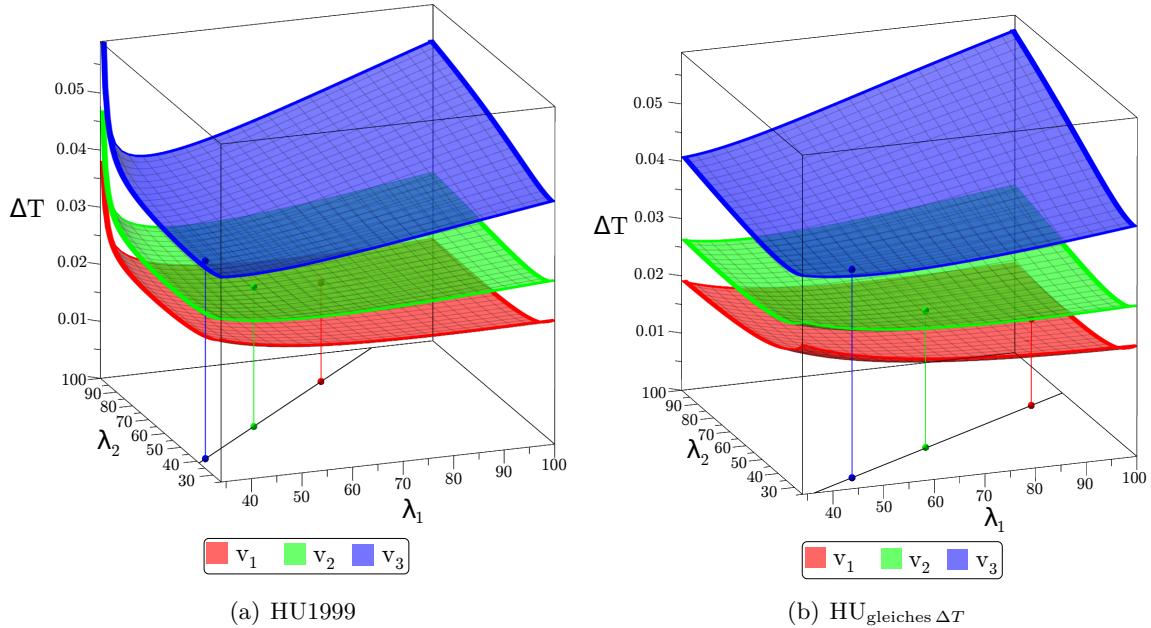


Abbildung 6.8.: Plot der aus den analytischen Ansätzen HU1999 (a) und $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ (b) berechneten Unterkühlungen, abhängig von λ_1 und λ_2 , für unterschiedliche Geschwindigkeiten. Die Ergebnisse von v_1 , v_2 und v_3 sind in rot, grün und blau abgebildet. Die globalen Minima der Unterkühlungen λ_{JH} sowie ihre Projektionen in die Grundebene der Plots sind entsprechend den Farben der jeweiligen Geschwindigkeiten dargestellt. Die Abbildung wird ebenfalls in [327] genutzt.

Für den Vergleich der Simulationen mit den analytischen Ansätzen werden die lamellaren Abstände von λ_1 und λ_2 systematisch von 40 bis 100 Zellen mit einer Schrittweite von 5 Zellen unabhängig voneinander variiert. Da jede der daraus folgenden 169 dreidimensionalen Simulationen auf 360 CPUs für bis zu 2 Stunden lief, wurde zur Reduktion des Rechenaufwandes nur die Geschwindigkeit v_2 simuliert.

Abhängig von den lamellaren Abständen tritt stationäres Wachstum, Oszillation der Phasenbreiten oder ein Umschlag in den Mustern auf. Durch die unterschiedlichen lamellaren Abstände bilden sich zudem verschiedene Formen von Kettenstrukturen aus. Eine Übersicht der Wachstumsmodi und der sich ausbildenden Muster ist in Abb. 6.9 in Abhängigkeit von λ_1 und λ_2 dargestellt. Die Bereiche, in denen stationäres Wachstum ohne eine Oszillation der Phasenbreiten auftritt, sind mit orangen Dreiecken markiert. Ähnlich wie bei den Simulationen mit einem lamellaren Abstand resultiert eine Vergrößerung der λ 's tendenziell in einer Oszillation der Phasenbreiten, was in Abb. 6.9 mit blauen Kreisen hervorgehoben ist. Für eine weitere Veränderung der lamellaren Abstände kann es zu einem Musterumschlag kommen. Dieser kann entweder in einem anderen Muster oder in mehrfachen Kettenstrukturen resultieren und ist mit grünen Quadraten gekennzeichnet.

Durch das Diagramm wird deutlich, dass sich die Anpassung der Muster in λ_1 -Richtung von der in die λ_2 -Richtung unterscheidet. Die Einbuchtung in dem mit grün markierten Bereich bei $90 \leq \lambda_1 \leq 100$ und $60 \leq \lambda_2 \leq 80$ kann durch das Zusammenspiel der Oszillationsfreiheitsgrade, der Diffusionslänge und der treibenden Kräfte durch die Gibbs-Energien erklärt werden. Durch die definierte Diffusionslänge tritt eine Oszillation in den Phasenbreiten mit zunehmenden lamellaren Abständen auf. Ist λ_2 größer als die Einbuchtung, so ist die Oszillation zwar stärker, hat allerdings auch einen größeren Freiheitsgrad in λ_2 -Richtung und ist somit nicht stark genug, um einen Musterumschlag hervorzurufen.

Um das Auftreten der verschiedenen Wachstumsmodi zu illustrieren, sind ergänzend ausgewählte Schnittbilder senkrecht zur Erstarrungsrichtung nach 1 Million Zeitschritten in der Nähe der Wachstumsfront in Abb. 6.9 dargestellt. Insbesondere in den Simulationen in der oberen rechten Ecke treten Oszillationen auf, welche temporär zu anderen Phasenfraktionen führen. In Übereinstimmung mit dem Hebelgesetz und dem Phasendiagramm bleiben die durchschnittlichen Phasenanteile der Gesamtsimulation allerdings bei einem Drittel für jede Phase konstant.

Die Unterkühlungen aus den Simulationen mit der Geschwindigkeit v_2 , in denen das Kettenmuster erhalten bleibt, sind in Abb. 6.10 über den beiden lamellaren Abstände λ_1 und λ_2 mit orangen Punkten aufgetragen. Die Simulationsergebnisse zeigen einen ähnlichen Verlauf wie die in blau und grün abgebildeten Unterkühlungsebenen der analytischen Ansätze $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ und $HU1999$.

Ähnlich wie für die analytischen Kurven, die in Abb. 6.8 gezeigt sind, bildet sich ein globales Minimum der Unterkühlungen bei λ_{JH} . Dieser Tiefpunkt befindet sich bei ungefähr $\lambda_1 = 50$ und $\lambda_2 = 50$, was in einem Verhältnis $\lambda_2/\lambda_1 = 1.0$ entspricht. Dieses Verhältnis liegt zwischen den beiden aus den analytischen Ansätzen berechneten Werten von $\lambda_2/\lambda_1 = 1.138$ für $HU1999$ und $\lambda_2/\lambda_1 = 0.705$ für $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$. Der Wert von λ_{JH} aus den Simulationen unterscheidet sich in der euklidischen Metrik um 8.1 Zellen vom Tiefpunkt von $HU1999$ und um 15.5 Zellen vom Minimum aus $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$. Die Unterkühlungen bei diesen lamellaren Abständen unterscheiden sich, bezogen auf die jeweiligen analytischen Werte, um 2.1 % für $HU1999$ und um 1.3 % für $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$.

Für die betrachteten lamellaren Abstände tritt die größte Abweichung zwischen den Simulationen und $HU1999$, bezogen auf die analytischen Werte, für $\lambda_1 = 50$ und $\lambda_2 = 100$ mit 3.4 % auf. Bei dem Vergleich der Unterkühlungen aus den Simulationen mit denen aus $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$ betragen die maximalen relativen Abweichungen 9.1 % für die Abstände $\lambda_1 = 100$ und $\lambda_2 = 40$.

Zusätzlich sind in der Grundebene des 3D-Plots Schnitte mit $\lambda_1 = \text{konst.}$ und $\lambda_2 = \text{konst.}$ markiert. Die Unterkühlungen für diese Schnitte sind für Simulationen und Analytiken im unteren Teil von Abb. 6.10 über die jeweiligen lamellaren Abstände aufgetragen.

Es zeigt sich, dass für die Simulationen ein Jackson-Hunt-Verhalten nach Gl. (6.1) für λ_1 mit $\lambda_2 = \text{konstant}$ sowie für λ_2 mit $\lambda_1 = \text{konstant}$ auftritt. Die Unterkühlungen für $\lambda_1 = \lambda_2$ sind in der bereits diskutierten Abb. 6.6 dargestellt.

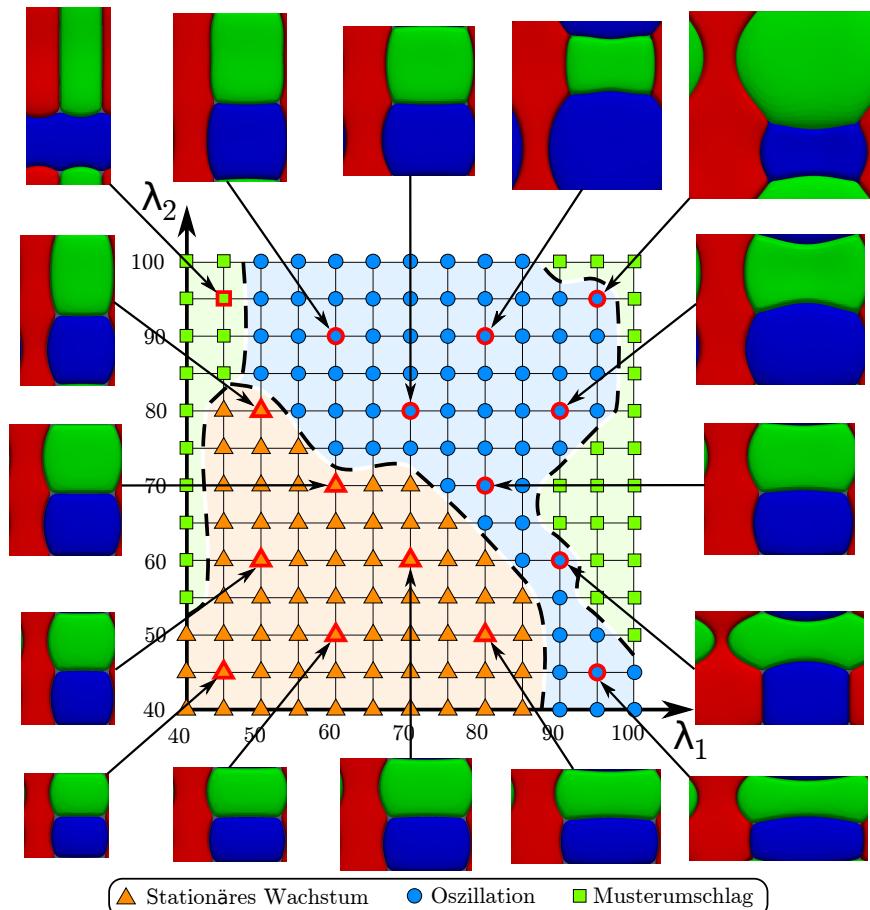


Abbildung 6.9.: Übersicht über die sich entwickelnden Muster in Abhängigkeit von lamellaren Abständen λ_1 und λ_2 . Die Schnittbilder in der Nähe der Erstarrungsfront nach 1 Million Zeitschritten zeigen eine Auswahl der entstehenden Mikrostrukturen. Die Darstellung basiert auf einer Abbildung in [327].

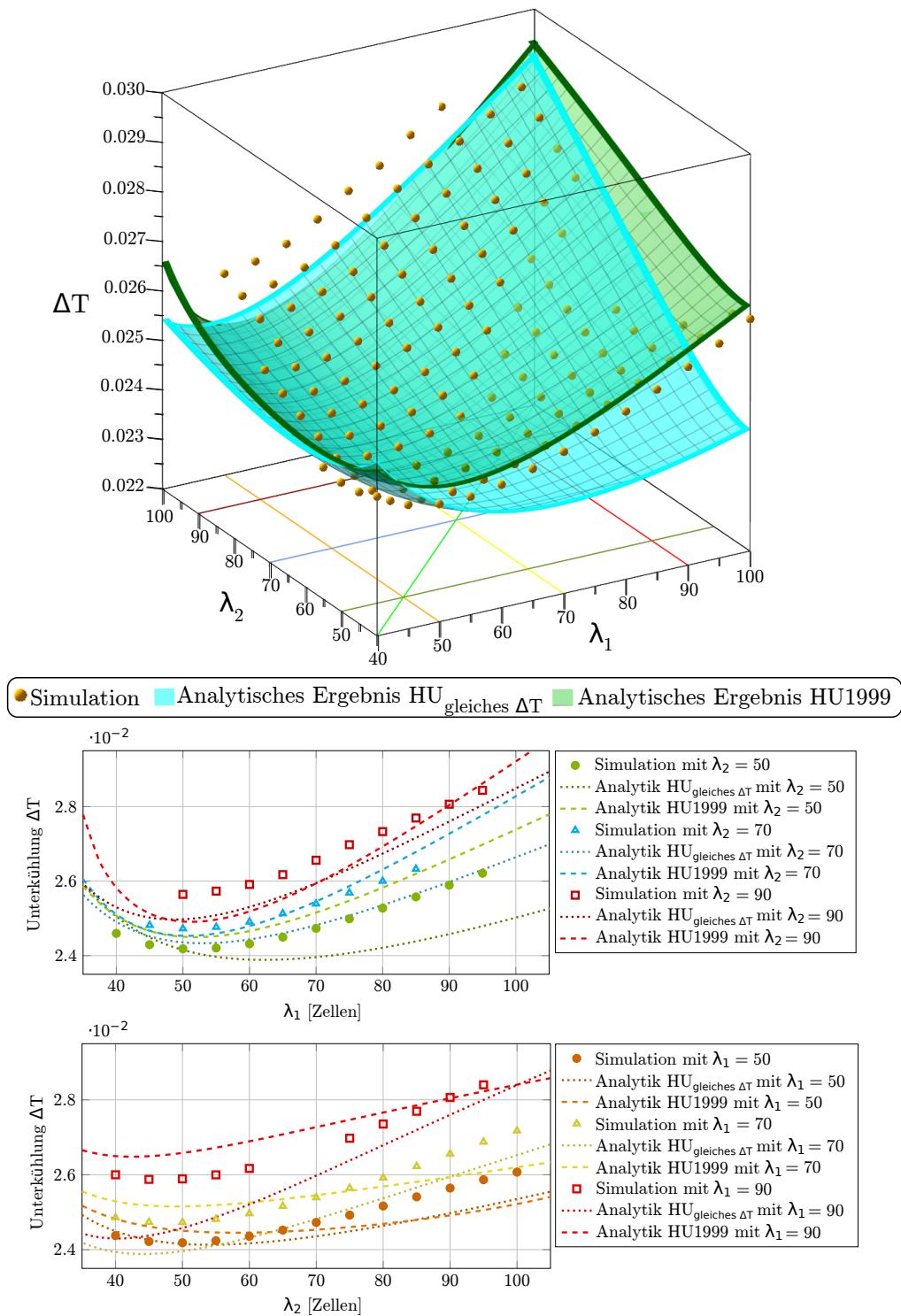


Abbildung 6.10.: Plot der durchschnittlichen Frontunterkühlung über den lamellaren Abständen λ_1 und λ_2 für Kettenstrukturen. Die Unterkühlungen der 3D-Simulationen sind als orange Punkte eingetragen und die analytischen Voraussagen von HU1999 [253] und HU_{gleiches ΔT} als blaue und grüne Ebenen. Zusätzlich sind ausgewählte Schnitte für konstante Werte von λ_1 über λ_2 und andersherum dargestellt. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [327].

6.2.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Abschnitt wurde der Einfluss verschiedener lamellarer Abstände auf die Unterkühlungen der erstarrenden Mikrostrukturen während einer gerichteten Erstarrung analysiert. Dazu wurden für verschiedene zwei- und dreidimensionale Muster sowohl die lamellaren Abstände, wie auch die Erstarrungsgeschwindigkeiten systematisch variiert und ihre durchschnittlichen Frontunterkühlungen gemessen. Um Einflüsse, beispielsweise aufgrund ungleicher Grenzflächenenergien oder Phasenanteile zu vermeiden, wurde für die Untersuchung ein ideales ternäres eutektisches System verwendet.

Durch den Vergleich mit analytischen Ansätzen aus bereits publizierten Arbeiten (HU1999 und CPN2011) sowie einer im Rahmen dieser Arbeit hergeleiteten Analytik ($HU_{\text{gleiches } \Delta T}$) war eine Validierung des Phasenfeldmodells basierend auf der Differenz der Großkanonischen Potentiale möglich. Insgesamt zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit den analytischen Ansätzen von Himemiya und Umeda [253] (HU1999) und Choudhury et al. [270] (CPN2011) in den 2D-Simulationen mit den Anordnungen $\alpha - \beta - \gamma$ und $\alpha - \beta - \alpha - \gamma$. Durch den quantitativen Vergleich mit analytischen Ansätzen von HU1999 und dem neu hergeleiteten Ansatz $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$, der auf [253] basiert und die Annahme gleicher Unterkühlungen wie in [270] verwendet, konnte das Modell auch für ein Kettenmuster in 3D validiert werden.

Aus den gezeigten Untersuchungen lassen sich folgende vier Haupt schlussfolgerungen ziehen die auch im weiteren Verlauf der Arbeit genutzt werden:

- (i) Da sich sowohl für zweidimensionale als auch für dreidimensionale Muster eine gute Übereinstimmung zwischen den analytischen Vorhersagen und den gemessenen Simulationswerten ergibt, ist das verwendete Phasenfeldmodell in der Lage, den Zusammenhang zwischen der Wachstumsgeschwindigkeit, der Unterkühlung und den lamellaren Abständen für das betrachtete ideale ternäre eutektische System quantitativ korrekt abzubilden.
- (ii) Das in zweidimensionalen Simulationen beobachtete Jackson-Hunt-Verhalten der Unterkühlung tritt auch für die Kettenstrukturen in Richtung der beiden lamellaren Abstände auf und für konstante Verhältnisse zwischen den beiden Abständen. Dies gilt sowohl für die Simulationen als auch für die Analytiken.
- (iii) Das beobachtete Jackson-Hunt-Verhalten der Unterkühlung resultiert in globalen Minima in den Simulationen und den analytischen Vorhersagen der betrachteten dreidimensionalen Kettenstrukturen. Für die analytischen Ansätze konnte gezeigt werden, dass die globalen Minima, für die betrachteten Geschwindigkeiten, Ursprungsgeraden mit unterschiedlichen Steigungen in der λ_1 - λ_2 -Ebene folgen. Die Werte der Tiefpunkte erfüllen die Korrelationen $\lambda_{1,JH} \sqrt{v} = \text{konstant}$ und $\lambda_{2,JH} \sqrt{v} = \text{konstant}$.
- (iv) Insgesamt zeigen beide Analytiken für dreidimensionale Kettenmuster (HU1999 und $HU_{\text{gleiches } \Delta T}$) ein ähnliches Verhalten in der Unterkühlung, obwohl sie, wie in Abschnitt 5.3 diskutiert, auf unterschiedlichen Annahmen beruhen. Dies deutet darauf hin, dass für das betrachtete System, beide Annahmen hinreichende Gültigkeit besitzen.

6.3. Numerische Jackson-Hunt-Analyse in 3D für ein hexagonales Muster

Da für eine hexagonale Struktur, die in Schnitten parallel zur Wachstumsfront bei der gerichteten Erstarrung idealer ternärer eutektischer Systeme auftritt, keine analytische Lösung der Jackson-Hunt-Beziehung [240] publiziert ist, wird eine numerische Untersuchung durchgeführt. Dabei wird die Basis-Größe systematisch von 80×46 bis 160×92 Voxel-Zellen variiert, um den lamellaren Abstand λ zu bestimmen, an welchem die minimale durchschnittliche Frontunterkühlung für eine konstante Erstarrungsgeschwindigkeit auftritt. Aus Gründen der Konsistenz wird der Abstand λ weiterhin als lamellarer Abstand bezeichnet, obwohl er einem Abstand der Fasern entspricht. Die Auflösung in jeder Zelle der Simulation bleibt konstant und dementsprechend wird die physikalische Gebietsgröße variiert. In den Simulationen wird eine Geschwindigkeit des Temperaturgradienten von $2.1 \cdot 10^{-3}$ Zellen pro Zeitschritt verwendet. Da das Verhältnis $1 : \sqrt{3}$ zwischen Länge und Breite des Gebietes parallel zur Erstarrungsfront ebenfalls konstant gehalten wird, können sich unverzerrte Hexagone entwickeln, die durch einen lamellaren Abstand λ charakterisiert sind, wie in Abb. 6.11(a) dargestellt. Weiterhin ist durch die vorgegebene initiale Mikrostruktur eine gleichbleibende Anzahl von Hexagonen im Gebiet gewährleistet. Die nachfolgenden Ergebnisse dieses Kapitels sind teilweise ebenfalls in [71] publiziert.

Ausgehend von der initial gesetzten Mikrostruktur entwickelt sich in den Simulationen ein hexagonales Muster parallel zur Erstarrungsfront ohne Verzerrungen, ähnlich wie in Abb. 6.11(a) schematisch dargestellt. Wie auch in den Simulationen in Abschnitt 6.2 konvergiert die durchschnittliche Frontunterkühlung während des Wachstums zu einem konstanten Wert. Die resultierenden Unterkühlungen sind in Abb. 6.11(b) über dem Lamellenabstand λ aufgetragen, welcher durch die Basis-Größe definiert ist. Auch für dieses Muster wird ein Jackson-Hunt-Verhalten beobachtet, da die Unterkühlungen annähernd der Gl. (6.1) folgen. Dies wird durch eine Ausgleichsrechnung mit der Methode der kleinsten Quadrate verdeutlicht, bei der die Konstanten als $A = 1.53 \cdot 10^{-3}$ und $B = 1.394$ bestimmt werden. Basierend darauf beträgt der lamellare Abstand, bei dem die minimale Unterkühlung auftritt, $\lambda_{JH} = 93$ Voxel-Zellen. Der Verlauf der Unterkühlung aus der Ausgleichsrechnung ist als schwarze gestrichelte Kurve in Abb. 6.11(b) eingetragen.

6.4. Einfluss der Gebietsgröße auf die entstehenden Muster

Basierend auf der Bestimmung der Basis-Größe mit minimaler Unterkühlung in einem Rechengebiet in dem sich unverzerrte Hexagone aus einer initial gesetzten Struktur entwickelt haben, wird im Folgenden die Gebietsgröße ermittelt, bei der die periodischen Randbedingungen senkrecht zur Erstarrungsrichtung nur einen vernachlässigbaren Einfluss auf die entstehenden Muster haben. Dazu wird in Simulationen mit einer quadratischen Basis-Größe und einer zufällig gesetzten Mikrostruktur mit Keimen, die viel kleiner sind als die finalen Fasern, die Gebietsgröße systematisch von 60×60 auf 800×800 Voxel-Zellen vergrößert und die entstehenden Muster quantifiziert.

In Abb. 6.12 und 6.13 sind Schnitte senkrecht zur Erstarrungsrichtung nach 6 000 Zellen Wachstum dargestellt, was ca. 3 Millionen Zeitschritten entspricht. Zur Verbesserung der

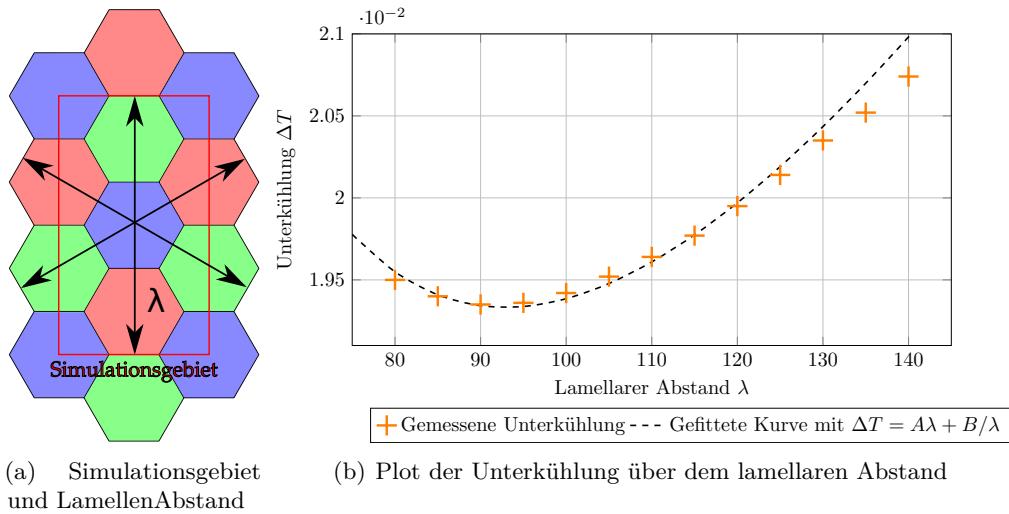


Abbildung 6.11.: (a) Schematische Darstellung der Basis-Größe und die Definition des Lamellenabstandes λ , (b) Zusammenhang zwischen der Unterkühlung und dem lamellaren Abstand von in Simulationen gemessenen Werten (orange Kreuze) und das Ergebnis einer Ausgleichsrechnung mit der Methode der kleinsten Quadrate mit dem Ansatz der Form $\Delta T = A\lambda + B/\lambda$ (schwarze Kurve). Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [71].

Vergleichbarkeit sind links jeweils die auf eine Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen zusammengesetzten Gebiete abgebildet und rechts die tatsächlich simulierten Gebiete. Da die Auflösung in jeder Zelle in allen Simulationen konstant gehalten wird, entsprechen die verschiedenen Basis-Größen unterschiedlichen physikalischen Gebieten. In Abb. 6.12 sind die Ergebnisse mit Basis-Größen von 60×60 bis zu 150×150 Zellen gezeigt und in Abb. 6.13 die Schnittbilder von 160×160 bis zu 800×800 Zellen.

Die Simulationsergebnisse werden zunächst qualitativ beschrieben. Anschließend daran erfolgt eine Quantifizierung mit den in Kapitel 5 beschriebenen statistischen Methoden. Dazu werden die Anzahl der nächsten Nachbarn, das Verhältnis zwischen Innen- und Außenkreisradien um die jeweiligen Schwerpunkte, die relative Grenzlinienlänge sowie die durchschnittliche Frontunterkühlung verwendet.

Wie in Abb. 6.12 und 6.13 gezeigt, bilden sich für Basis-Größen bis zu 250×250 Voxel-Zellen, was ungefähr $2.7 \lambda_{JH} \times 2.7 \lambda_{JH}$ entspricht, hexagonale Strukturen ohne unregelmäßige Fasern aus. Allerdings treten Verzerrungen der Strukturen für eine Anpassung an das periodische Gebiet auf. Eine Ausnahme bildet das Simulationsergebnis mit der Basis-Größe von 70×70 Zellen. Anstelle der hexagonalen Struktur bildet sich eine Kettenstruktur ähnlich der in Abschnitt 6.2.2 untersuchten aus. Dies verdeutlicht, dass in Abhängigkeit von der gewählten Basis-Größe unterschiedliche stabile Muster entstehen können. Für Basis-Größen mit 250×250 Voxel-Zellen und größer, dargestellt in Abb. 6.13 (f) bis (j), bilden sich ebenfalls hexagonale Strukturen. Diese sind aber unterschiedlich ausgerichtet und zwischen den ausgerichteten hexagonalen Bereichen bilden sich verzerrte Fasern.

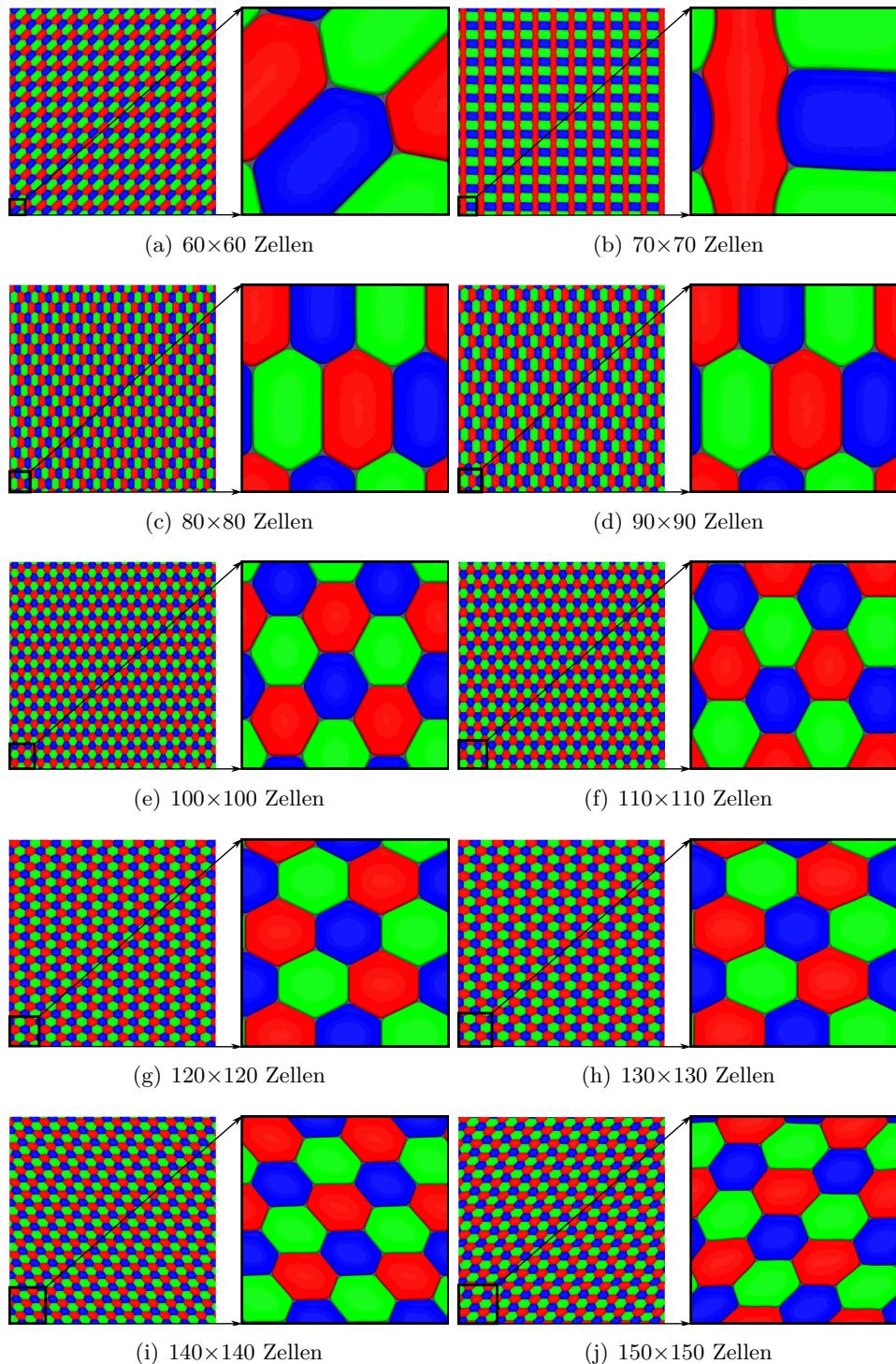


Abbildung 6.12.: Schnitte senkrecht zur Erstarrungsrichtung bei einer Wachstumshöhe von 6000 Voxel-Zellen bzw. 3 Millionen Zeitschritten für verschiedene Basisgrößen von 60×60 bis zu 150×150 Voxel-Zellen. Zur Vergleichbarkeit sind links jeweils die auf eine Basisgröße von 800×800 Voxel-Zellen zusammengesetzten Gebiete abgebildet und rechts die tatsächlich simulierten Gebiete. Die Größe jeder Simulationszelle ist konstant, d.h. die physikalische Gebietsgröße wurde vergrößert.

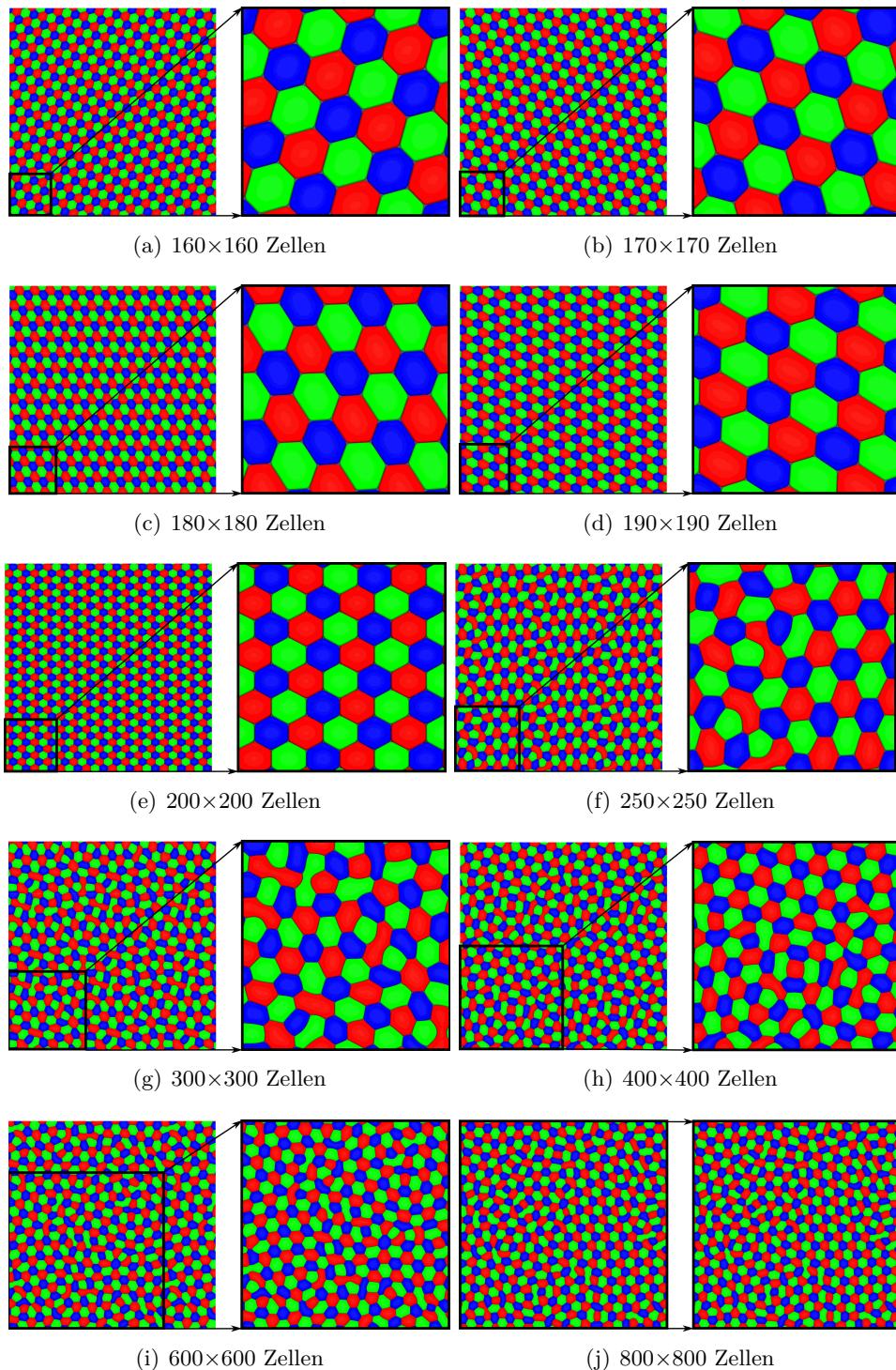


Abbildung 6.13.: Schnitte senkrecht zur Erstarrungsrichtung bei einer Wachstumshöhe von 6000 Voxel-Zellen bzw. 3 Millionen Zeitschritten für verschiedene Basisgrößen von 160×160 bis zu 800×800 Voxel-Zellen. Zur Verbesserung der Vergleichbarkeit sind links jeweils die auf eine Basisgröße von 800×800 Voxel-Zellen zusammengesetzten Gebiete abgebildet und rechts die tatsächlich simulierten Gebiete. Die Größe jeder Simulationszelle ist konstant, d.h. die physikalische Gebietsgröße wurde vergrößert.

Die unterschiedlichen Arten von Strukturen werden auch durch die Nächste-Nachbarn-Statistiken der Fasern verdeutlicht. In Abb. 6.14 ist die Anzahl der nächsten Nachbarn einer Festphase zu den jeweiligen anderen beiden Phasen dargestellt. Durch die gleichen Parameter, z. B. bei den Grenzflächenenergien, sind in einem idealen ternären eutektischen System alle drei Festphasen äquivalent. Daher wurde für die Berechnung der Statistiken zwar zwischen den einzelnen Festphasen unterschieden, in Abb. 6.14 jedoch ist die zusammengefasste Verteilung aller drei Phasen aufgetragen. In einer durchgängig hexagonalen Struktur ohne unregelmäßige Fasern haben alle Fasern jeweils drei Nachbarn der anderen beiden Phasen. Dieses Verhalten zeigt sich für kleinere Gebietsgrößen von 60×60 und 80×80 bis 200×200 Zellen. Die Simulation mit der Basis-Größe 70×70 Zellen hat in dieser Statistik, wegen des sich ausformenden stabilen Kettenmusters, ein Maximum von zwei Nachbarn. Für Simulationen mit Basis-Größen von 250×250 Voxel-Zellen und größer bilden sich ebenfalls überwiegend hexagonale Strukturen mit jeweils drei Nachbarn. Allerdings hat die Verteilung durch die verzerrten Fasern eine höhere Varianz. Es bilden sich jeweils ca. 10 % Fasern mit zwei und vier Nachbarn der anderen Phasen. Mit zunehmender Basis-Größe konvergieren die Nächste-Nachbarn-Statistiken und die drei größten Simulationen unterscheiden sich in dem Anteil von drei Nachbarn um maximal 2.7 %.

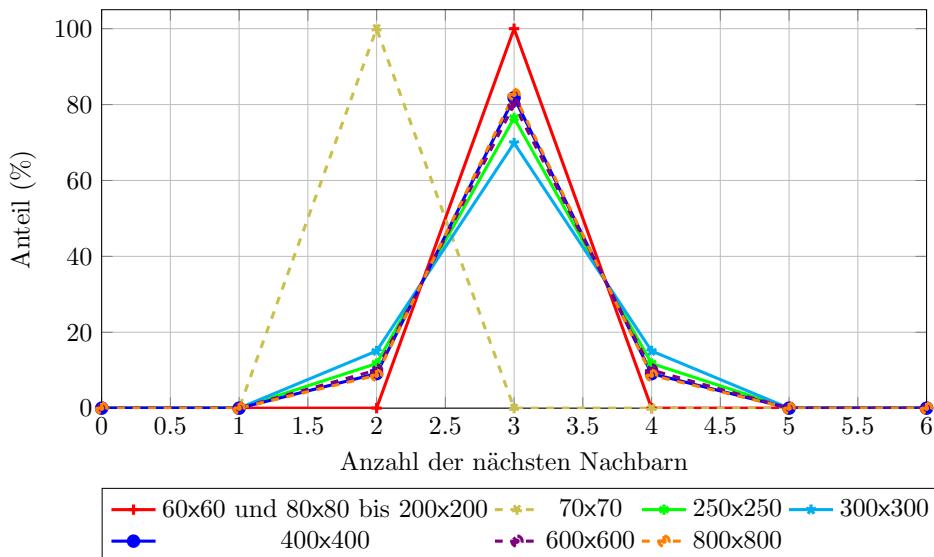


Abbildung 6.14.: Gemittelte Verteilung der Anzahl der nächsten Nachbarn einer Festphase zu den beiden jeweiligen anderen Phasen für verschiedene Basis-Größen. Diese Abbildung basiert auf einem Diagramm in [71].

Die Konvergenz zeigt, dass die Schnittbilder der großen Simulationen statistisch invariant werden, was ein Indiz für statistische Volumenelemente (SVE) ist. In dieser Statistik zeigt sich, dass eine minimale Basis-Größe von 400×400 Voxel-Zellen, was $4.3\lambda_{JH} \times 4.3\lambda_{JH}$ entspricht, notwendig ist, um den Einfluss der Randbedingungen auf die nächsten Nachbarn signifikant zu reduzieren.

Für eine weitere Quantifizierung des Gebietsgrößeneinflusses auf die entstehenden Muster wird das Verhältnis zwischen Innen- und Außenkreisradien betrachtet. Der Innenkreisradius ist definiert als der minimale Abstand zwischen dem Schwerpunkt einer Faser und der Grenze

zu einer anderen Phase in euklidischer Metrik. Entsprechend ist der Außenkreisradius der maximal mögliche Abstand zwischen dem Schwerpunkt einer Faser und einer Phasengrenze. Die gemittelten Verhältnisse für alle Fasern der drei Festphasen sind in Abb. 6.15 als orange Kreuze über der Kantenlänge der Basis-Größe aufgetragen. Zusätzlich sind die Standardabweichungen für jede Simulation eingetragen.

Für eine perfekte hexagonale Struktur mit gleichen Phasenanteilen ergibt sich ein Verhältnis von $2/\sqrt{3} \approx 1.155$, welches als schwarze, gestrichelte Linie in Abb. 6.15 eingezeichnet ist. Die durchschnittlichen Verhältnisse in den Simulationen sind immer größer als dieser Wert. Dies resultiert aus den Verzerrungen durch die Anpassung an die periodischen Randbedingungen in den kleineren Simulationen und den nicht-hexagonalen Fasern zwischen den Bereichen der hexagonalen Strukturen in den größeren Simulationen. Für Simulationen, in denen die Abweichung von der perfekten Hexagonform gering sind und sich keine unregelmäßigen Fasern ausbilden, ergibt sich eine relativ geringe Abweichung zwischen den durchschnittlichen Verhältnissen und dem theoretisch vorhergesagten Wert.

Für Basis-Größen kleiner als 400×400 Voxel-Zellen oszilliert das Verhältnis. Dies spiegelt wider, dass eine relativ kleine Veränderung der Basis-Größen einen großen Einfluss auf die auftretenden Muster haben kann und daher die Bestimmung statistisch aussagekräftiger Ergebnisse in derartig kleinen Gebieten problematisch ist. In den Simulationen mit Basis-Größen $\geq 400 \times 400$ Zellen tritt eine Konvergenz für das Verhältnis der Radien mit einem Wert von annähernd 1.75 auf. Ebenso bleibt die Standardabweichung mit einem Wert von 1.1 näherungsweise konstant. Dies zeigt ebenso wie die Anzahl der nächsten Nachbarn, dass die Statistiken für große Gebiete invariant werden und somit die Simulationen weniger stark von den Randbedingungen beeinflusst sind.

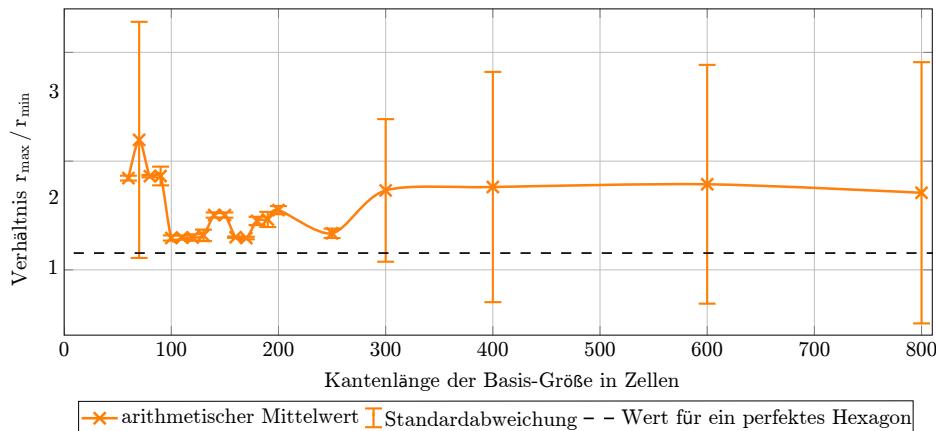


Abbildung 6.15.: Mittleres Verhältnis zwischen den Innenkreis- und Außenkreisradien und ihre Standardabweichung für verschiedene Basis-Größen. Die schwarze, gestrichelte Linie zeigt das theoretische Verhältnis für perfekte hexagonale Strukturen von ungefähr 1.155. Diese Abbildung basiert auf einem Diagramm in [71].

Als weitere Quantifizierungsmethode neben den Nächste-Nachbarn-Statistiken und dem Verhältnis zwischen Innen- und Außenkreisradien wird im Folgenden die relative Grenzlinienlänge genutzt, um den Gebietsgrößeneinfluss zu bestimmen. Für jede Simulation konvergieren die Grenzlinienlängen während der Erstarrung zu konstanten Werten. Die konvergierten Werte

sind, bezogen auf die Anzahl der Zellen in der Basis, in Abb. 6.16 über der Kantenlänge der Basis-Größe aufgetragen. Sie werden im Weiteren als relative Grenzlinienlängen bezeichnet. Die statistische Äquivalenz der drei Festphasen im idealen ternären eutektischen System erlaubt es die drei Grenzlinienlängen in einer Statistik zusammenzufassen.

Die Werte streuen von 0.052 bis 0.080. Mit wachsender Gebietsgröße konvergieren sie zu einem Wert von ungefähr 0.069, was durch die schwarze, gestrichelte Linie in Abb. 6.16 verdeutlicht wird. Insbesondere ab einem Wert größer als 300×300 Voxel-Zellen gibt es nur noch geringe Schwankungen.

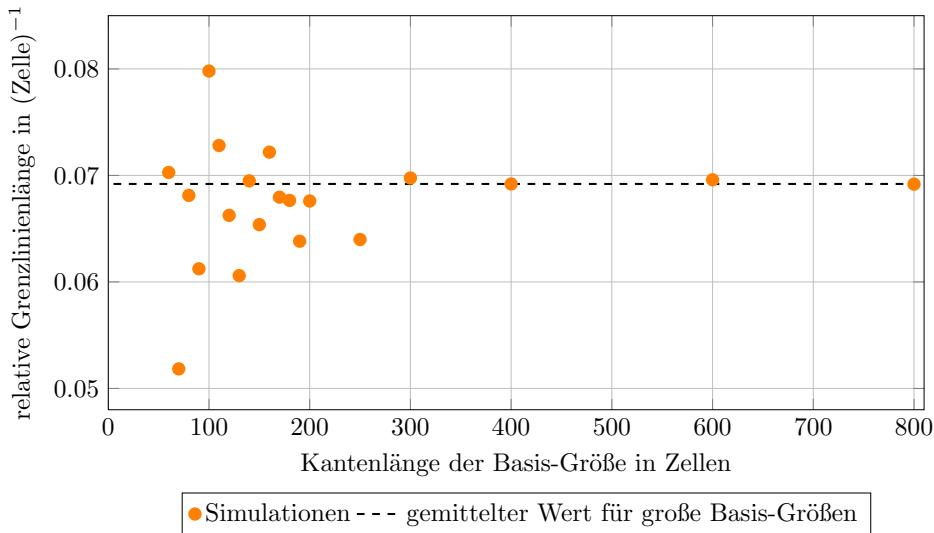


Abbildung 6.16.: Relative Grenzlinienlänge in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront am Ende der Simulationen für verschiedene Basis-Größen. Die schwarze gestrichelte Linie verdeutlicht die Konvergenz für größere Basis-Größen. Diese Abbildung basiert auf einem Diagramm in [71].

Ein ähnliches Verhalten wie für die relative Grenzlinienlänge über der Kantenlänge der Basis-Größe zeigt sich auch für die durchschnittlichen Frontunterkühlungen am Ende der Simulationen, die in Abb. 6.17 für die Simulationen mit hexagonalen Strukturen aufgetragen sind. Die gemessenen Unterkühlungen der Simulationen für Basis-Größen kleiner als 400×400 Voxel-Zellen streuen um den Wert $2.02 \cdot 10^{-2}$. Für größere Basis-Größen konvergieren die Unterkühlungen zu diesem Wert. Da die Fasern in den kleineren Simulationen ihre Größe an die vorgegebene periodische Länge anpassen müssen und in größeren Gebieten verzerrte Muster zwischen den hexagonalen Strukturen auftreten, sind die Unterkühlungen in Abb. 6.17 größer als der Wert bei λ_{JH} in Abb. 6.11. Diese Abweichungen verdeutlichen den Einfluss der Randbedingungen für kleinere Gebiete ($< 4.3\lambda_{JH}$).

Alle angewandten Quantifizierungsmethoden zeigen, dass sich der Einfluss der Randbedingungen auf die entstehenden Muster für große Gebiete verringert und die Statistiken invariant werden. Für kleine Gebiete dagegen haben die Randbedingungen einen starken Einfluss auf die entstehenden Formen der Fasern. Die Ergebnisse zeigen die Notwendigkeit von großskali gen Simulationen für die Untersuchung der freien Musterbildung während der gerichteten Erstarrung ternärer eutektischer Legierungen, um statistisch und physikalisch aussagekräftige

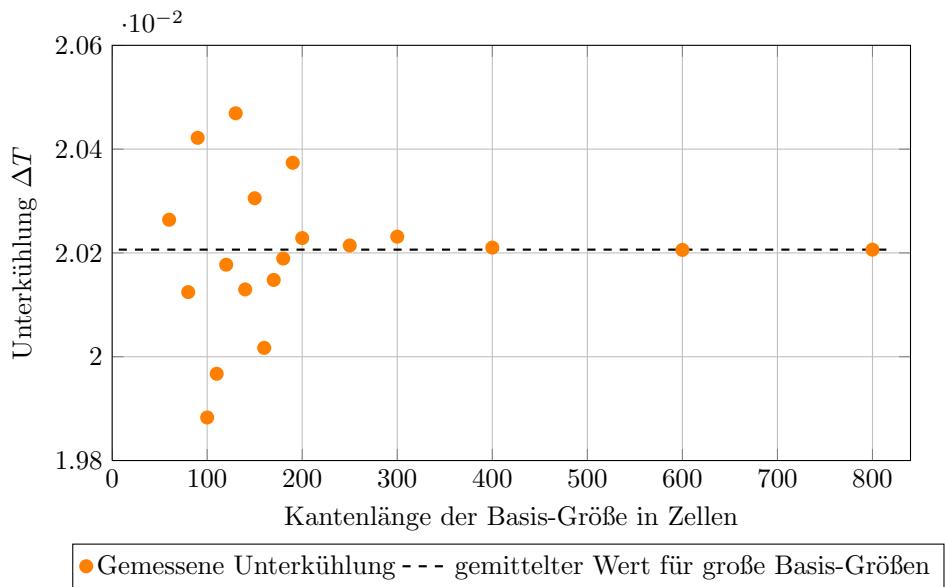


Abbildung 6.17.: Gemessene Unterkühlung der Simulationsergebnisse aus Abb. 6.12 und Abb. 6.13, nachdem sie zu jeweils konstanten Werten während des Wachstums konvergiert sind, über der Kantenlänge der Basis-Größe. Die schwarze, gestrichelte Linie verdeutlicht die Konvergenz für größere Basis-Größen.

Ergebnisse zu erhalten. Die Erkenntnisse werden in den nachfolgenden Simulationen, in denen die freie Musterbildung untersucht wird, genutzt.

Das unterschiedliche Verhalten des Systems für Simulationsgebiete kleiner und größer als $4.3\lambda_{JH} \times 4.3\lambda_{JH}$ ist nicht darauf zurückzuführen, dass die Basis-Größe kein ganzzahliges Vielfaches von λ_{JH} ist. Dies wurde überprüft, indem Simulationen mit 268×465 und 465×465 Voxel-Zellen durchgeführt wurden. Die Simulation mit einer Basis-Größe von 268×465 Zellen entspricht einem Gebiet mit einem Verhältnis der Höhe zur Breite von $1 : \sqrt{3}$ und $5\lambda_{JH}$. Das Basis-Größe von 465×465 Zellen korrespondiert zu $5\lambda_{JH} \times 5\lambda_{JH}$. Schnitte parallel zur Wachstumsfront in der Nähe der Erstarrungsfront, nach 3 Millionen Zeitschritten, sind in Abb. 6.18 abgebildet. In beiden Simulationen wurde das Ausbilden verzerrter Strukturen zwischen den hexagonalen Mustern beobachtet.

6.5. Stabilität der auftretenden Muster

In den Simulationen der vorherigen Abschnitte haben sich unterschiedliche stabile Muster in Abhängigkeit von der Gebietsgröße ausgebildet. Neben den hexagonalen Strukturen trat für die Simulation mit der Basis-Größe von 70×70 Voxel-Zellen auch eine Kettenstruktur auf. Um die Stabilität der hexagonalen Strukturen zu untersuchen, wird im Folgenden der Einfluss von verschiedenen Verhältnissen von Breite und Höhe der Basis-Größe untersucht. Dabei wird die Höhe mit $\lambda_{JH} = 93$ Zellen konstant gehalten und die Breite des Simulationsgebietes systematisch von 25 bis 140 Voxel-Zellen in Schritten von 5 Zellen variiert.

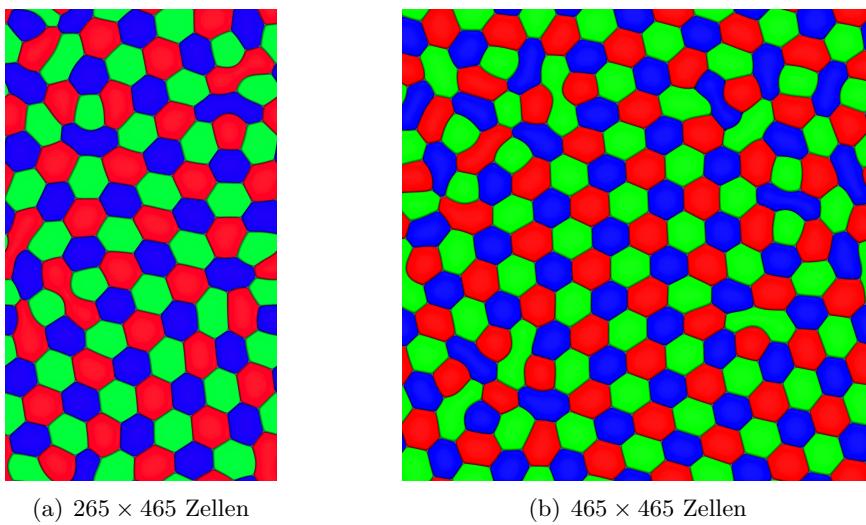


Abbildung 6.18.: Schnitte senkrecht zur Erstarrungsrichtung bei einer Wachstumshöhe von 6000 Voxel-Zellen bzw. 3 Millionen Zeitschritten für die Basis-Größen von 268×465 und 465×465 Voxel-Zellen. Die Simulation mit einer Basis-Größe 268×465 entspricht einem Gebiet mit einem Verhältnis der Höhe zur Breite von $1 : \sqrt{3}$ und $5\lambda_{JH}$. Das Gebiet von 465×465 korrespondiert zu $5\lambda_{JH} \times 5\lambda_{JH}$.

Abhängig von der Breite des Gebietes entwickeln sich unterschiedliche Muster. Für eine Basis-Größe von 25×93 Zellen entsteht eine lamellare Struktur mit der Phasenordnung $\alpha - \beta - \gamma$. Für eine Breite von 30 bis 90 Zellen entwickeln sich hexagonale Strukturen und eine weitere Vergrößerung der Breite resultiert in H-Strukturen. H-Strukturen sind beispielhaft in der dritten Mikrostruktur in Abb. 6.19 dargestellt. Die beiden vertikalen Linien der H-Strukturen bestehen aus den roten und grünen Festphasen und die horizontale Linie aus der blauen Phase. Bei noch größeren Breiten (110 bis 140 Zellen) treten Kettenstrukturen auf. Die unterschiedlichen Bereiche des Faser- bzw. Lamellenabstandes, in denen die verschiedenen Muster auftreten, sind in Abb. 6.19 markiert. Zusätzlich sind Beispiele für die einzelnen Strukturen, die sich in den Simulationen entwickeln, abgebildet.

In Abb. 6.19 ist mit blauen Kreuzen die durchschnittliche Frontunterkühlung der Simulationen über der Gebietsgröße aufgetragen. Abgesehen von den H-Strukturen geht der Wechsel der Muster mit einer Verringerung der Unterkühlung einher. Dieses Verhalten tritt auch für das Kettenmuster in Abb. 6.7 auf und wird bei [268] für ein binäres eutektisches System beschrieben. Diese Ergebnisse demonstrieren, dass selbst für ein ideales ternäres eutektisches System verschiedene stabile Muster in Abhängigkeit von der Gebietsgröße auftreten können und dass eine größere Vielfalt von Mustern neben der hexagonalen Struktur existiert.

Zusätzlich zu den Ergebnissen mit verschiedenen Breiten des Gebietes, bei konstanter Höhe, sind in Abb. 6.19 die Unterkühlungen für Basis-Größen mit dem Verhältnis von $1 : \sqrt{3}$ als orange Kreuze eingetragen. Da die Unterkühlungen der beiden Simulationsserien sich unterscheiden, zeigt sich, dass die Verzerrung der Fasern einen direkten Einfluss auf die Frontunterkühlung hat.

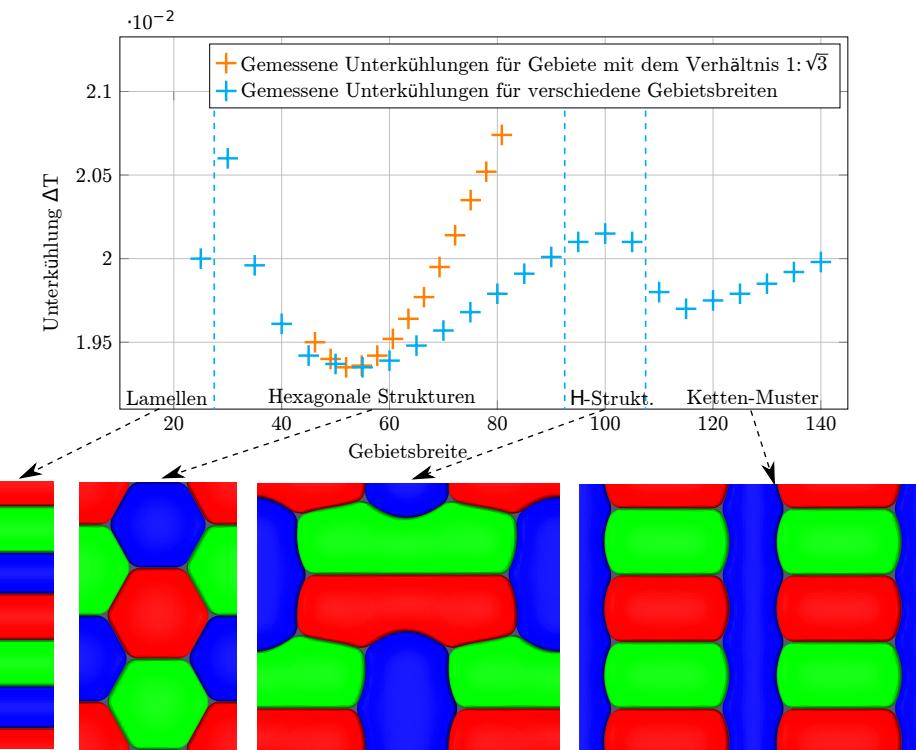


Abbildung 6.19.: Plot der Unterkühlung an der Erstarrungsfront über der Gebietsbreite. Die Simulationen mit einer konstanten Höhe von 93 Zellen sind als blaue Kreuze dargestellt und die Ergebnisse mit dem Verhältnis $1 : \sqrt{3}$ zwischen Höhe und Breite der Basis-Größe mit orangefarbenen Kreuzen. Zusätzlich sind Beispiele für die unterschiedlichen in den Simulationen entstehenden Mikrostrukturen dargestellt. Der Plot basiert auf einem Diagramm in [71].

Um den Einfluss der initialen Mikrostruktur auf die entstehenden hexagonalen Muster und ihre Stabilität gegen Störungen zu untersuchen, wurden die in Abb. 6.20 gezeigten Simulationen mit unterschiedlich verzerrten initialen Mikrostrukturen durchgeführt. Als initiale Keime wurden Quader in einer hexagonalen Anordnung mit unterschiedlichen Verhältnissen von Höhe und Breite gesetzt. Durch die verzerrten Strukturen in einem Gebiet mit der Basis-Größe von 400×400 Zellen lässt sich der Effekt von räumlich verteilten Störungen studieren. Die Nuklei wurden dabei mit Faser- bzw. Lamellenabständen in der Größenordnung von λ_{JH} gewählt. Für eine Untersuchung der sich entwickelnden Muster aus der Schmelze als Resultat der Prozessbedingungen ohne Nukleation, sollte allerdings die Größe der Nuklei deutlich kleiner als die der Fasern in der sich ausgebildeten Mikrostruktur gesetzt werden [71]. Da die Untersuchung der Stabilität gegen Störungen das Ziel der Studie ist, wird in den drei Simulationen dieser Serie die beschriebene quaderförmige, initiale Mikrostruktur verwendet.

Zur Sicherstellung statistisch invarianter Gebietsgrößen wird eine Basis-Größe von 400×400 Voxel-Zellen für 600 000 Zeitschritte berechnet. Da die Fasern die periodischen Randbedingungen erfüllen sollen, wird das Verhältnis zwischen der Höhe und der Breite der quaderförmigen Fasern in den Ebenen parallel zur Erstarrungsfront als 0.75, 1.0 und 1.5 gesetzt.

Während der Erstarrung entwickeln sie die Quader für die ersten beiden Verhältnisse zu stabilen Hexagonen, wie in Abb. 6.20 mit den blau und orange hinterlegten Serien von Schnittbildern verdeutlicht wird. Da die Hexagone aber nicht die periodischen Längen mit dem Verhältnis $1 : \sqrt{3}$ erfüllen, sind sie verzerrt. Dies resultiert in Verhältnissen von Innen- zu Außenkreisradien von 1.29 und 1.33, statt des Wertes für ein ideales Hexagon von 1.155. Bei der Simulation mit dem Verhältnis der Höhe zur Breite von 1.5 entwickelt sich aus den Quadern zunächst ebenfalls eine verzerrte hexagonale Struktur. Diese bleibt dann allerdings nicht stabil, sondern wechselt in eine H-Struktur. Diese Art von Strukturen trat auch in Abb. 6.19 auf und ist beispielhaft mit einer gelben Kontur in dem Schnittbild rechts unten in Abb. 6.20 hervorgehoben. Das Auftreten von H-Strukturen wurde in Abb. 6.20 bei den Simulationen mit den Verhältnissen 1.53, 1.61 und 1.69 beobachtet.

Das Auftreten der unterschiedlichen entstehenden Muster resultiert aus einem Wechselspiel zwischen den Grenzflächenenergien und der Diffusionslänge. Für das Verhältnis von Höhe zu Breite von 1.5 wird die Triebkraft für die Musteränderung groß genug für einen Musterumschlag, da die Länge der Diffusionspfade zu groß wird. Wegen der gleichmäßig aufgebrachten Störung sind auch die sich entwickelnden Muster regelmäßig ausgebildet. Dies steht im Gegensatz zu den Ergebnissen des vorherigen Abschnitts, bei denen der Mikrostrukturentwicklungsprozess aus der initialen Voronoi-Verteilung in großen Gebieten zu geordneten hexagonalen Strukturen, separiert von verzerrten Fasern, führt.

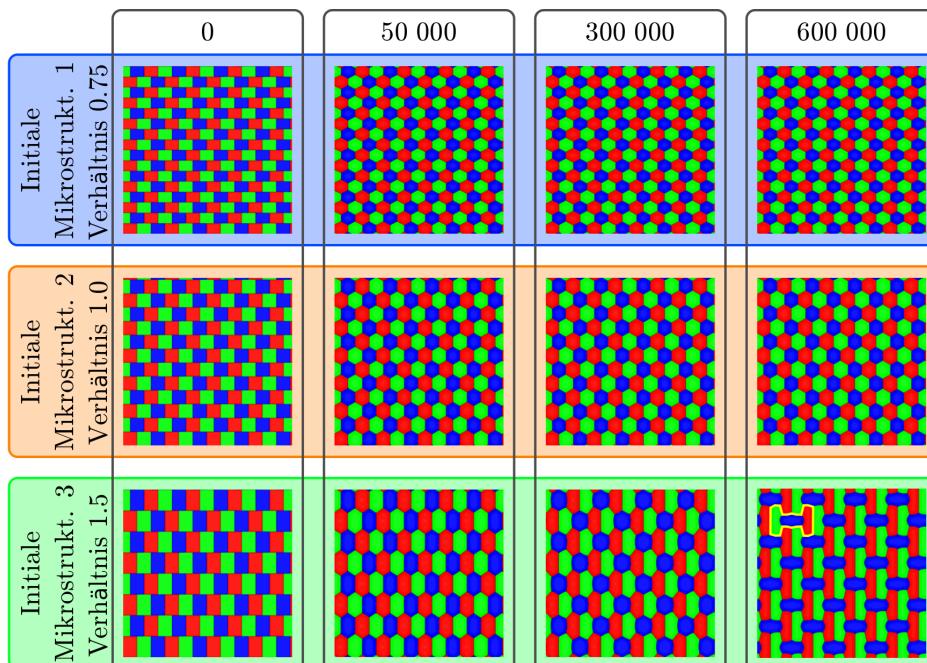


Abbildung 6.20.: Die Erstarrungsfront für verschiedene Zeitschritte und eine initiale quaderförmige Mikrostruktur in Gebieten mit einer Basis-Größe von 400×400 Voxel-Zellen. Für die Quader wurden unterschiedliche Verhältnisse von der Länge zur Breite in Ebenen parallel zur Erstarrungsfront gesetzt. In dem Simulationsergebnis rechts unten ist eine H-Struktur in gelb hervorgehoben. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [71].

Insgesamt wird mit den in diesem Abschnitt vorgestellten Simulationsergebnissen gezeigt, dass sich für ein ideales ternäres eutektisches System verschiedene stabile Muster ausformen können. Diese hängen neben der Gebietsgröße auch von der initial gesetzten Mikrostruktur ab und verdeutlichen neben der Notwendigkeit von großskaligen Simulationen die Erforderlichkeit von zufälligen Mikrostrukturen als Startbedingung, um eine freie Musterentwicklung der Mikrostruktur zu erhalten.

6.6. Musterbildung in großskaligen Simulationen

Mit den bisherigen Untersuchungen konnte die notwendige Basis-Größe für statistische Volumenelemente als 400×400 Voxel-Zellen, was $4.3\lambda_{JH} \times 4.3\lambda_{JH}$ entspricht, für das ideale ternäre eutektische System bestimmt werden. Zusätzlich wurde die Notwendigkeit einer zufällig gesetzten initialen Mikrostruktur aus kleinen Nuklei gezeigt. Diese Erkenntnisse werden im Folgenden für die Berechnung großskaliger Phasenfeldsimulationen der gerichteten eutektischen Erstarrung genutzt.

In den Simulationen mit einer Basis größer als 250×250 Zellen in Abb. 6.13 wird das Auftreten von verzerrten Fasern zwischen verschiedenen ausgerichteten hexagonalen Strukturen beobachtet. Insbesondere für die in Abb. 6.13 (j) dargestellte Simulation mit der Basis-Größe 800×800 Voxel-Zellen bilden die ungeordneten Bereiche Übergangszonen zwischen den geordneten hexagonalen Bereichen. Dieses Verhalten tritt auch bei experimentellen Schliffbildern ternärer eutektischer Legierungen, wie beispielhaft für das ternäre eutektische System Al-Ag-Cu in Abb. 6.2 dargestellt, auf. Im Schliffbild bildet sich ein Kontaktbereich von zwei verschiedenen ausgerichteten Kettenmustern, der durch eine blaue, gestrichelte Linie hervorgehoben ist.

Um die Ausbildung von Übergangszonen zu untersuchen wurde eine Simulation mit einer Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen und einer Wachstumshöhe von ungefähr 20 150 Zellen durchgeführt, die in Abb. 6.21 abgebildet ist. Zusammengesetzt hat die Simulation ein Gesamtgebiet von 12.9 Milliarden Voxel-Zellen. Sie lief für 42 Stunden auf 11 200 CPUs auf dem SuperMUC-Cluster des Leibniz-Rechenzentrums München. In dieser Zeit wurden 10 Millionen Zeitschritte berechnet. Bei der Darstellung in Abb. 6.2 sind zusätzlich zur Gesamtstruktur (rechts oben) die drei Festphasen einzeln freigestellt.

Um die zeitliche Evolution der Muster zu analysieren sind in Abb. 6.22 Schnittbilder senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Nähe der Erstarrungsfront zu sechs unterschiedlichen Zeitpunkten dargestellt. Zusätzlich sind in gelb hexagonale und in blau nicht-hexagonale Strukturen unter den jeweiligen Schnittbildern gekennzeichnet. Zur Unterscheidung der beiden Strukturen wird die Anzahl der nächsten Nachbarn und das Verhältnis zwischen den Innen- und Außenkreisradien verwendet. Wenn eine Faser jeweils drei Nachbarn der beiden anderen Festphasen besitzt und zusätzlich das Verhältnis zwischen Innen- und Außenkreisradius zwischen 1.155 und 1.7 liegt, ist sie als Hexagon definiert.

Ausgehend von der zufällig gesetzten initialen Mikrostruktur haben sich nach 1 Million Zeitschritten erste Bereiche mit hexagonalen Strukturen ausgebildet. Zwischen diesen Strukturen existieren aber noch große Bereiche nicht-hexagonaler Muster. Mit fortschreitender gerichteter Erstarrung breiten sich die hexagonalen Strukturen aus, da sich die Ausrichtung benachbarter

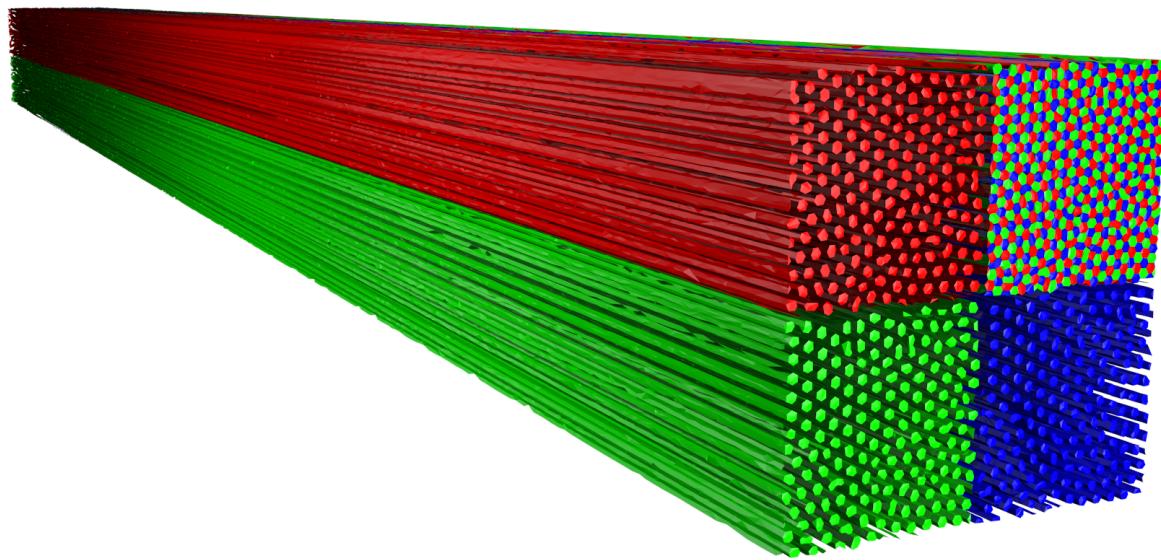


Abbildung 6.21.: Darstellung der dreidimensionalen Mikrostruktur und der freigestellten Festphasen. Die Abbildung ist entnommen aus [71].

Fasern anpasst. Dies kann beispielsweise durch den Vergleich von Schnittbildern nach 2 Millionen und nach 3 Millionen Zeitschritten gesehen werden. Die ungeordneten Regionen sind instabil und wandern indem sie die Ausrichtung benachbarter Phasen verändern. Wenn die Ausrichtung benachbarter hexagonaler Strukturen ähnlich ist und der Grad der Unordnung in den Übergangszonen klein ist, können sich hexagonale Strukturen vereinen und somit größere, geordnete Regionen bilden. Dieses Verhalten kann beispielhaft im unteren Teil der Schnittbilder nach 2 bzw. 3 Millionen Zeitschritten beobachtet werden.

Im Gegensatz zu dieser zunehmenden Ordnung und Ausrichtung der Strukturen existieren auch ungeordnete Bereiche, die über die Zeit stabil bleiben, wie beispielsweise der mit einer roten Umrandung markierte „Bogen“ in den Schnitten ab 4 Millionen Zeitschritten. Die Form und die Nachbarschaftsbeziehungen der Fasern des „Bogens“ sind für die letzten 6 Millionen Zeitschritte nahezu konstant. Ähnlich wie in den vorherigen Abschnitten bestehen diese Übergangszonen aus stabilen, verzerrten Hexagonen und nicht-hexagonalen Strukturen.

Zur Quantifizierung der Stabilität der Faseranordnungen wird im Folgenden das Verhältnis der Innen- und Außenkreisradien sowie die Grenzlinienlänge in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront analysiert. Die Ergebnisse dieser Statistiken sind in Abb. 6.23 aufgetragen. Zusätzlich ist bei dem Verhältnis der Radien der theoretische Wert für perfekte Hexagone von $2/\sqrt{3} \approx 1.155$ als schwarze gestrichelte Linie eingezeichnet. In beiden Statistiken tritt eine Konvergenz der Werte innerhalb der ersten 4 Millionen Zeitschritte auf. Dabei strebt das Verhältnis zwischen den Innen- und Außenkreisradien zu einem Wert von 1.61 und die relative Grenzlinienlänge pro Zelle zum Wert 0.069, was auf eine statistische Invarianz der einzelnen Schnittbilder zueinander hindeutet. Trotz der Konvergenz der Statistiken findet eine fortlaufende Mikrostrukturentwicklung statt und es tritt keine Stationarität in der Form und Position der Fasern auf.

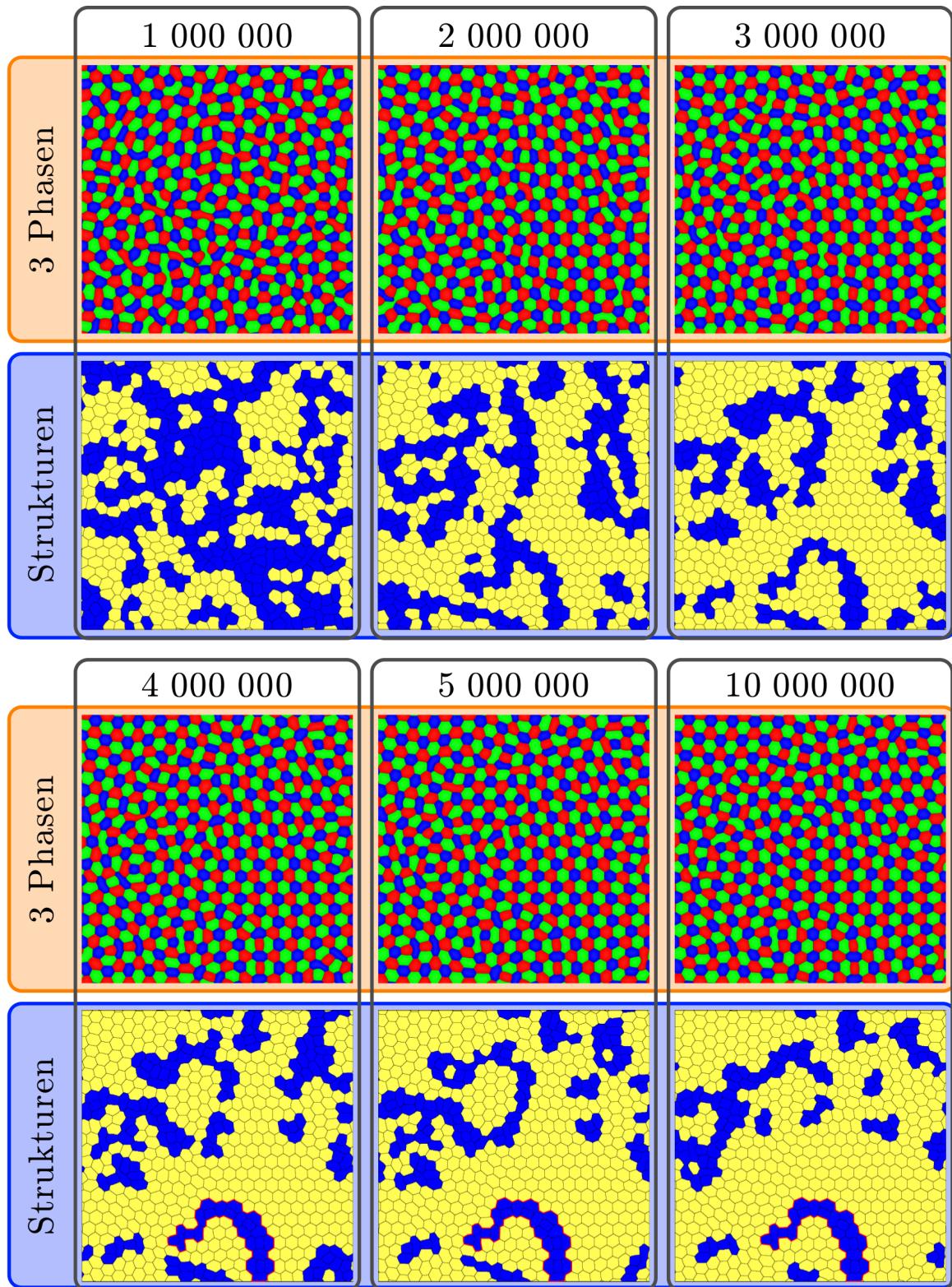


Abbildung 6.22.: Schnittbilder senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Nähe der Erstarrungsfront zu sechs unterschiedlichen Zeitpunkten einer Simulation des idealen ternären eutektischen Systems mit der Gesamtgebietegröße von $800 \times 800 \times 20\,150$ Voxel-Zellen. Zusätzlich sind in gelb hexagonale und in blau nicht-hexagonale Strukturen unter den jeweiligen Schnittbildern gekennzeichnet. Die Unterscheidung erfolgt auf Basis der Nachbarschaftsbeziehungen und der Verhältnisse von Innen- und Außenkreisradien. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [71].

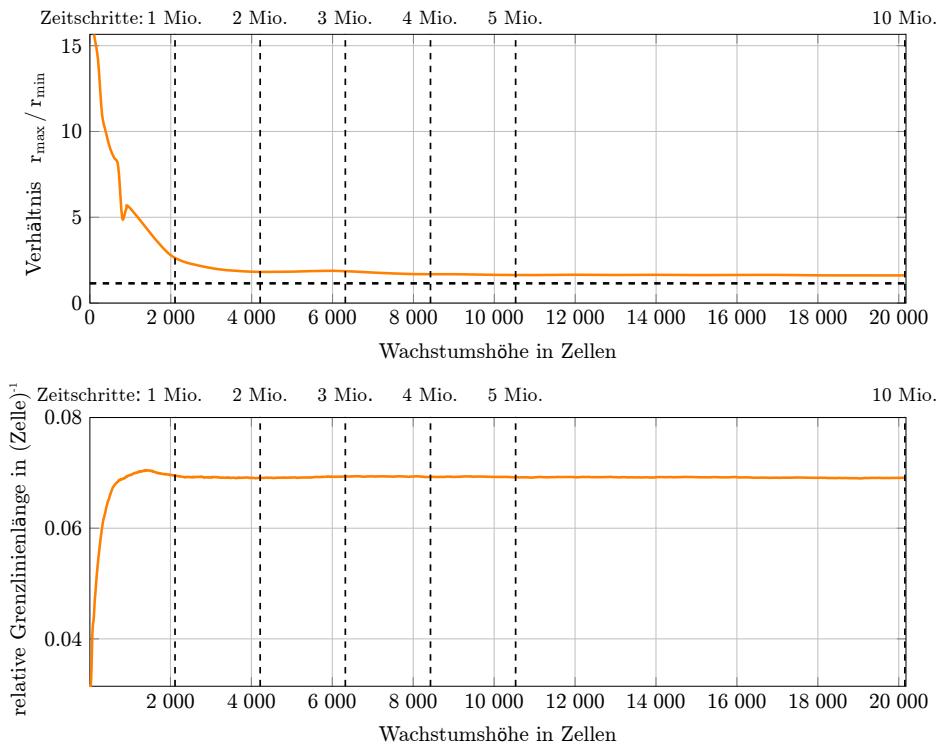


Abbildung 6.23.: Durchschnittliches Verhältnis zwischen den Innen- und Außenkreisradien (oben) und die Grenzlinienlänge pro Zelle (unten) über der Wachstumshöhe. Im Plot der Verhältnisse der Radien ist der theoretische Wert für perfekte Hexagone (1.155) dargestellt. Weiterhin sind die zu Abb. 6.22 korrespondierenden Zeitschritte markiert. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [71].

Die Konvergenz der Statistiken und die zunehmende Stationarität der Phasenanordnungen zeigt, dass obwohl sich das Gesamtsystem in einem Gleichgewichtszustand befindet, lokale Ungleichgewichte existieren. Dabei können neben dem erwarteten hexagonalen Muster auch nicht-hexagonale Strukturen einen von den umgebenden Strukturen abhängigen Gleichgewichtszustand erreichen. Dies wird beispielhaft durch den „Bogen“ in Abb. 6.22 verdeutlicht. Trotz des Gleichgewichts des Gesamtsystems findet eine fortdauernde Entwicklung der nicht-hexagonalen Strukturen statt.

Da die Ausbildung und Interaktion von Übergangszonen in kleinen Simulationsgebieten nicht beobachtet werden können, zeigt dies abermals die Bedeutung von großskaligen Simulationen für die Untersuchung der Entstehung räumlich komplexer Mikrostrukturen, wie sie auch in experimentellen Schliffbildern auftreten.

Da sich weiterhin auch bei den in Abb. 6.18 gezeigten Simulationen mit $5\lambda_{JH} \times 5\lambda_{JH}$ und $5\lambda_{JH} \times 5\lambda_{JH}/\sqrt{3}$ Übergangszonen ausbilden, ist somit sichergestellt, dass das beobachtete Verhalten nicht darauf zurückzuführen ist, dass die Basis-Größe kein ganzzahliges Vielfaches von λ_{JH} ist.

6.6.1. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Kapitel wurde die Musterbildung während der gerichteten Erstarrung in einem idealen ternären eutektischen System simuliert. Zunächst wurde das Modell validiert, indem es mit analytischen Ansätzen nach Jackson und Hunt [240, 253, 270] für verschiedene zwei- und dreidimensionale Muster verglichen wurde. Die Ergebnisse dieser Validierung sind in Abschnitt 6.2.3 zusammengefasst.

Daran anschließend wurde der Einfluss des Simulationsaufbaus, wie beispielsweise der Randbedingungen, der initialen Mikrostruktur und der Basis-Größe, auf die Musterbildung mit statistischen Methoden wie den Nächste-Nachbarn-Statistiken, der relativen Grenzlinienlänge und dem Verhältnis zwischen den Innen- und Außenkreisradien systematisch untersucht. Basierend auf diesen Ergebnissen wurde die Mikrostrukturevolution in einer großskaligen Simulation der gerichteten Erstarrung des idealen ternären eutektischen Systems ausgehend von einer zufälligen Voronoi-Verteilung studiert. Dabei konnte die Entwicklung von Übergangszonen, ähnlich wie sie in Experimenten auftreten, beobachtet werden.

Insgesamt lassen sich aus den Ergebnissen dieses Abschnittes die folgenden fünf Haupt schlussfolgerungen ziehen:

- (i) Durch optische Beobachtungen und verschiedene statistische Messmethoden konnte gezeigt werden, dass die Mikrostrukturentwicklung und die entstehenden Muster in kleinen Simulationsgebieten signifikant von den Randbedingungen beeinflusst werden. Selbst kleine Variationen in der Basis-Größe führen zu einer Veränderung der entstehenden Muster.
- (ii) In allen verwendeten Statistiken trat ab einer minimalen Gebietsgröße von 400×400 Voxel-Zellen parallel zur Erstarrungsfront eine statistische Invarianz für das verwendete System auf. Dies impliziert, dass eine minimale Gebietsgröße von $4.3\lambda_{JH} \times 4.3\lambda_{JH}$ notwendig ist, um mit diesem System statistisch aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten.
- (iii) Weiterhin wurde durch eine systematische Variation einer definierten quaderförmigen Struktur als initiale Mikrostruktur die Existenz verschiedener stabiler Musteranordnungen nachgewiesen. Diese Ergebnisse veranschaulichen die Notwendigkeit, initiale Mikrostrukturen mit Nuklei, deutlich kleiner als die Größenordnung von λ_{JH} , zu wählen, um die Musterausbildung, unabhängig von den Startbedingungen, untersuchen zu können. Ein Umschwung der Muster ist begleitet von einer Verringerung der durchschnittlichen Unterkühlung an der Erstarrungsfront.
- (iv) In den großskaligen Simulationen haben sich Regionen von verschiedenen ausgerichteten Hexagonen entwickelt, die durch Übergangszonen nicht-hexagonaler Strukturen getrennt sind. Dieses Verhalten, dass geordnete Regionen durch ungeordnete Strukturen getrennt sind, wird ebenfalls in experimentellen Schliffbildern beobachtet.
- (v) Insgesamt bleibt die Gesamt mikrostruktur in der großskaligen Simulation trotz lokaler Umordnungsprozesse der Fasern nach ca. 2 Millionen Zeitschritten weitestgehend konstant und es erfolgt eine Ausbildung stabiler Übergangszonen nicht-hexagonaler Strukturen.

7. Idealisierte Systeme

Im vorherigen Kapitel wird die Erstarrung eines idealen ternären eutektischen Systems untersucht. Dabei sind die Phasenfraktionen, die Konzentrationen der drei Komponenten in der Schmelze, die Grenzflächenenergien und die Diffusionskoeffizienten jeweils gleichgesetzt. In realen Legierungen, wie z.B dem System Al-Ag-Cu, ist dies nicht der Fall. Daher wird im Folgenden der Einfluss verschiedener Gleichgewichtskonzentrationen und Phasenfraktionen sowie unterschiedlicher Grenzflächenenergien auf die entstehenden Muster untersucht. Die in diesem Kapitel simulierten Systeme erlauben es, mit Hilfe des Vergleichs zum idealen System, den Einfluss dieser physikalischen Parameter gezielt zu untersuchen. Sie bilden einen Übergang zwischen dem idealen System (Kapitel 6) und dem ternären eutektischen System Al-Ag-Cu, welches in Kapitel 8 analysiert wird.

7.1. Einfluss verschiedener Gleichgewichtskonzentrationen auf die auftretenden Muster

Zunächst wird der Einfluss verschiedener Gleichgewichtskonzentrationen auf die auftretenden Muster simuliert, indem die Konzentration der Komponenten in der Phase α bei der ternären eutektischen Temperatur durch eine Variation der Gibbs-Energien systematisch verändert wird. Es werden drei Systeme (ID, S1 und S2) miteinander verglichen. Dabei entspricht ID dem idealen System aus Kapitel 6 mit den Parametern aus Tabelle 6.1, d.h. die Konzentration der Komponenten A, B und C in der Phase α betragen bei der ternären eutektischen Temperatur 0.6, 0.2, und 0.2 und die Anteile der drei Festphasen α , β und γ sind jeweils ein Drittel. Im System S1 wird die Konzentration der Komponenten in α durch eine Veränderung der Gibbs-Energie, entsprechend Tabelle 7.1, verschoben. Da die Konzentrationen der anderen Phasen gleich bleiben, erhöht sich der Phasenanteil von α . Im System S2 wird die Konzentration der Komponenten in α entgegengesetzt zu S1 verschoben. Die resultierten Gleichgewichtskonzentrationen von α und die Phasenfraktionen sind in Tabelle 7.2 zusammengefasst.

Die Gleichgewichtskonzentrationen bei der ternären eutektischen Temperatur sind in Abb. 7.1 auf einem Simplex der drei Komponenten A, B und C dargestellt. Dabei entsprechen die orangen Quadrate dem System ID, die blauen Dreiecke S1 und die grünen Kreise S2. Die Gleichgewichtskonzentrationen der Phasen β , γ und der Schmelze sind in allen drei Systemen identisch. Daher sind die Symbole dieser Phasen in Abb. 7.1 überlagert.

In Abb. 7.2 sind isotherme Schnitte durch die Phasendiagramme für ID in orange, für S1 in blau und für S2 in grün dargestellt. Abbildung 7.2(a) zeigt einen Schnitt direkt über der ternären eutektischen Temperatur bei $T = 1.001$ und in Abb. 7.2(b) sind die entstehenden Phasen nach der Erstarrung bei $T = 0.98$ dargestellt.

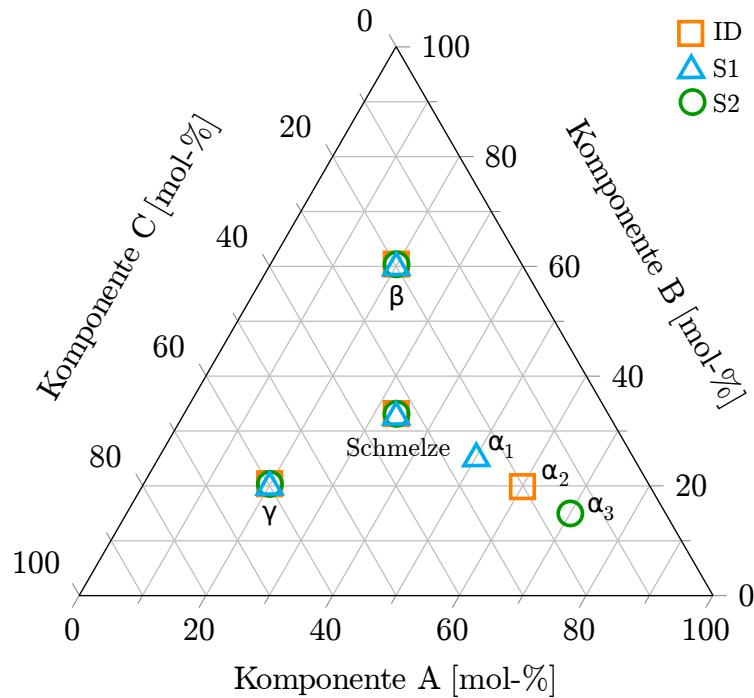


Abbildung 7.1.: Gleichgewichtskonzentrationen bei der ternären eutektischen Temperatur auf einem Simplex der drei Komponenten A, B und C. Die orangen Quadrate stellen das System ID dar, die blauen Dreiecke das System S1 und die grünen Kreise das System S2. Die Gleichgewichtskonzentrationen der Phasen β , γ und Schmelze sind für alle drei Systeme identisch.

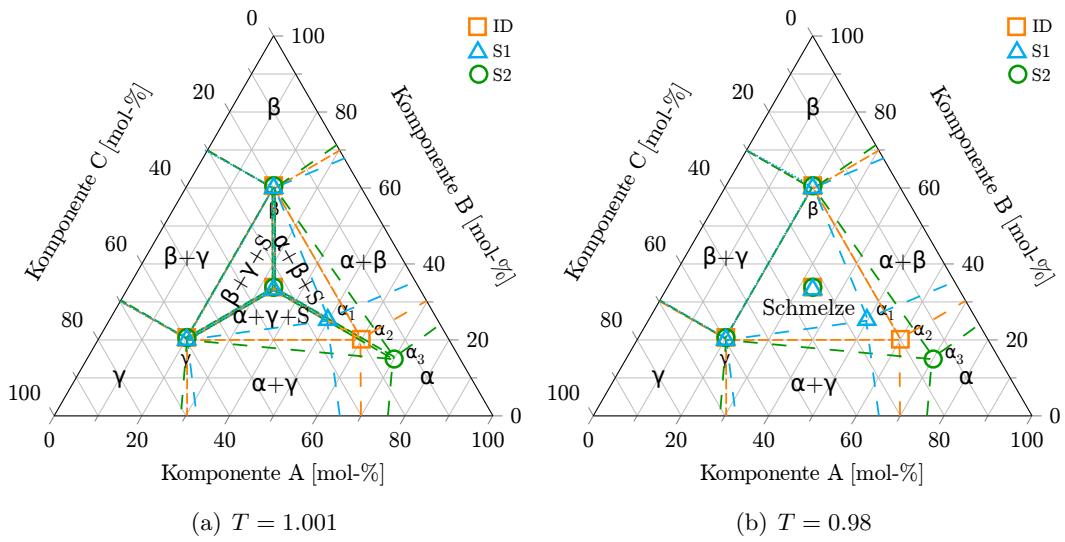


Abbildung 7.2.: Isotherme Schnitte durch die Phasendiagramme für ID in orange, für S1 in blau und für S2 in grün oberhalb ($T = 1.001$) und unterhalb ($T = 0.98$) der ternären eutektischen Temperatur.

Die veränderten Werte für das System S1, verglichen mit ID, sind in Tabelle 7.1 dargestellt und für das System S2, verglichen mit ID, in Tabelle 7.2.

Tabelle 7.1.: Veränderte Simulationsparameter für das System S1, im Vergleich zu ID.

Parameter	Simulationswert
τ	Phase α β γ liq
	α $\begin{bmatrix} - & 2.0 & 2.0 & 1.195 \end{bmatrix}$
	β $\begin{bmatrix} 2.0 & - & 2.0 & 1.0 \end{bmatrix}$
	γ $\begin{bmatrix} 2.0 & 2.0 & - & 1.0 \end{bmatrix}$
Gleichgewichtskonzentrationen in α	liq $\begin{bmatrix} 1.195 & 1.0 & 1.0 & - \end{bmatrix}$
	A: 0.5, B: 0.25, C: 0.25
	$\Xi_\alpha, \xi_\alpha, X_\alpha$ $\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.5 \\ -2.0 \end{bmatrix}, 0.875$
	Phasenfraktionen $\alpha: 0.44, \beta: 0.28, \gamma: 0.28$

Tabelle 7.2.: Veränderte Simulationsparameter für das System S2, im Vergleich zu ID.

Parameter	Simulationswert
τ	Phase α β γ liq
	α $\begin{bmatrix} - & 2.0 & 2.0 & 0.98 \end{bmatrix}$
	β $\begin{bmatrix} 2.0 & - & 2.0 & 1.2 \end{bmatrix}$
	γ $\begin{bmatrix} 2.0 & 2.0 & - & 1.19 \end{bmatrix}$
Gleichgewichtskonzentrationen in α	liq $\begin{bmatrix} 0.98 & 1.2 & 1.19 & - \end{bmatrix}$
	A: 0.7, B: 0.15, C: 0.15
	$\Xi_\alpha, \xi_\alpha, X_\alpha$ $\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -3.1 \\ -2.0 \end{bmatrix}, 0.765$
	Phasenfraktionen $\alpha: 0.27, \beta: 0.37, \gamma: 0.37$

Zur Untersuchung des Einflusses der Konzentrationsänderungen auf die entstehenden Muster sind in Abb. 7.3 Schnittbilder senkrecht zur Wachstumsrichtung, in der Nähe der Erstarrungsfront, nach 3 Millionen Zeitschritten mit einer Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen abgebildet. Dabei sind die α -, β - und γ -Phasen im Weiteren in rot, grün und blau dargestellt. In der Simulation des idealen Systems in Abb. 7.3(a) haben sich, wie auch in den Simulationen in Kapitel 6, verschiedene hexagonale Strukturen mit unterschiedlichen Ausrichtungen, die durch Übergangszenen getrennt sind, ausgebildet.

Im Simulationsergebnis des Systems S1 in Abb. 7.3(b) entwickelt sich visuell, wie durch die Gibbs-Energien definiert, ein höherer Phasenanteil von α . Dies hat eine Musteränderung von einer hexagonalen Struktur zu einer Kettenstruktur mit β - γ -Ketten, eingebettet in eine α -Matrix, zur Folge. Die räumliche Orientierung der Ketten ist dabei nicht ausgerichtet. Weiterhin treten einzelne kleinere hexagonale Bereiche auf.

In Abb. 7.3(c) ist ein Schnittbild parallel zur Erstarrungsfront des Systems S2 dargestellt. Bei diesem System ist der Anteil von α verringert und dementsprechend der Anteil von β und γ erhöht. Trotz der geänderten Gleichgewichtskonzentrationen entstehen weiterhin hauptsächlich

verzerrte hexagonale Strukturen. Im Vergleich mit Abb. 7.3(a) treten keine ausgeprägten Übergangszonen auf.

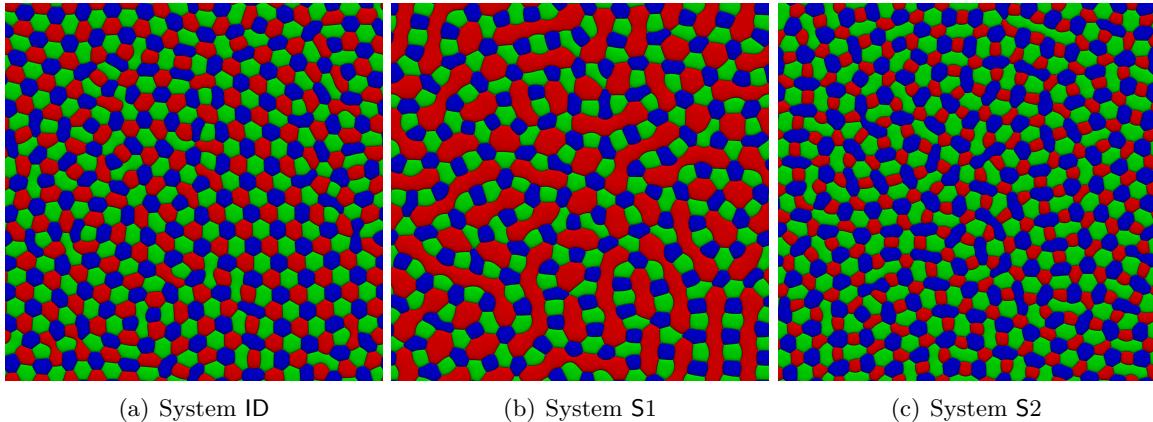


Abbildung 7.3.: Schnittbilder senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Nähe der Erstarrungsfront nach 3 Millionen Zeitschritten mit einer Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen für die Systeme ID, S1 und S2.

Zur Klassifizierung der räumlichen Anordnung der drei Festphasen senkrecht zur Erstarrungsrichtung in den Simulationen in Abb. 7.3 sind die Nächste-Nachbarn-Statistiken von β um α und γ um α am Ende der Simulation in Abb. 7.4 geplottet. In den Diagrammen ist das System ID mit orangen, das System S1 mit blauen und das System S2 mit grünen Kurven dargestellt. Die Werte in den Statistiken für β um α und γ um α sind identisch.

Die optisch beobachtete hexagonale Struktur spiegelt sich, für das System ID, in einem Anteil von ca. 82 % drei Nachbarn von β bzw. γ um α in Abb. 7.4 für das System ID wider.

Eine Struktur von β - und γ -Kettengliedern, eingebettet in eine α -Matrix, wie sie sich für die Simulation mit dem System S1 ausbildet, hat einen dominanten Anteil von vier und mehr β - und γ -Fasern um α zur Folge. Dies zeigt sich auch in Abb. 7.4, in der mehr als 90 % aller α -Elemente vier und mehr Nachbarn von β - bzw. γ -Fasern haben.

Der verringerte Phasenanteil von α in S2 äußert sich in den Nächste-Nachbarn-Statistiken in einem höheren Anteil von zwei β - und γ -Fasern um α . Der Anteil von zwei Nachbarn erhöht sich von ca. 12 % für ID auf etwa 53 % für das System S2 in Abb. 7.4. Das heißt, ein geringerer Anteil von α führt zu einem Aufbrechen der hexagonalen Strukturen zu quadratischen bzw. rechteckigen Fasern.

Diese Ergebnisse zeigen, dass eine Veränderung der Gleichgewichtskonzentrationen und daraus folgend der Phasenanteile der drei Festphasen einen signifikanten Einfluss auf die räumliche Anordnung der Fasern bzw. Lamellen hat. Änderungen der Phasenfraktionen von α in der Größenordnung von 10 % für S1 und 6 % für S2 führen zu einem Umschlag der Muster.

Um die Änderung der Form einzelner Fasern bei dieser Musteränderung zu untersuchen, wird im Folgenden die Morphologieklassifizierung basierend auf den Flächenträgheitsmomenten 2. Ordnung, welche in Abschnitt 5.2 beschrieben wurde, angewandt.

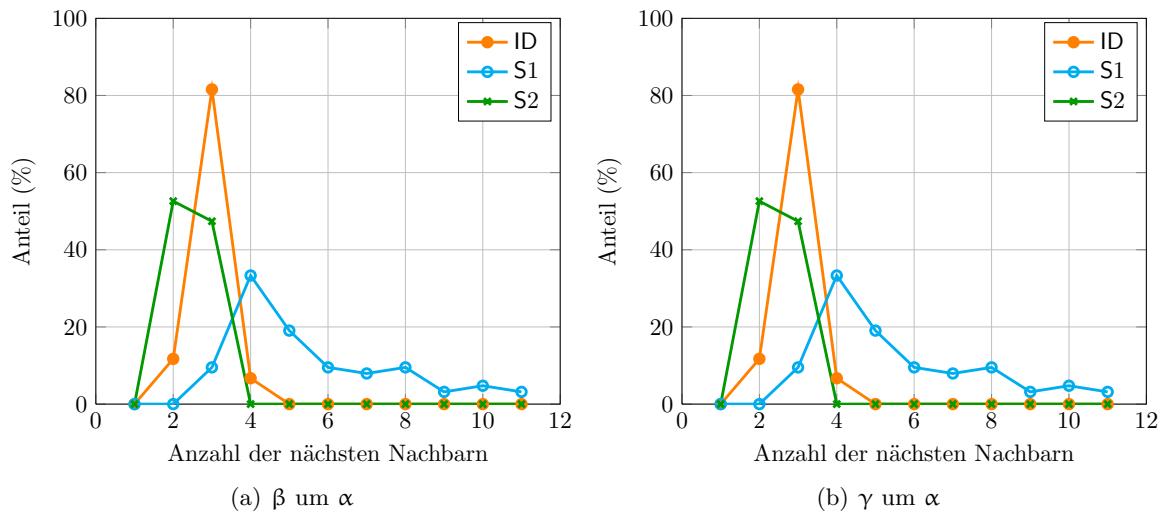


Abbildung 7.4.: Anzahl der nächsten Nachbarn von (a) β um α und (b) γ um α für die in Abb. 7.3 gezeigten Schnittbilder. Das System ID ist mit orangen, S1 mit blauen und S2 mit grünen Kurven dargestellt.

Zur Veranschaulichung der Bedeutung von Ω_1 und Ω_2 sind die Werte für ausgewählte Elemente der Phase α aus Abb. 7.3(b) in Abb. 7.5 dargestellt. Für einen Kreis gilt $\Omega_1 = \Omega_2 = 1$. Die Verzerrung eines Körpers, also sein Aspektverhältnis, wird mit Ω_1 beschrieben. Bei einer gegen unendlich gehenden Verzerrung strebt der Ω_1 -Wert gegen null. Die Abweichung von einer Kreis- bzw. Ellipsenform wird von Ω_2 beschrieben.

Die Bedeutung von Ω_1 , als Maß für die Verzerrung, wird durch den Vergleich der mit A und B markierten Fasern in Abb. 7.5(a) deutlich. Beide α -Fasern sind Oktagone im Schnittbild senkrecht zur Erstarrungsrichtung. Allerdings ist das Verhältnis von Innen- zu Außenkreis bei B größer, was in einem Ω_1 -Wert von 0.87 im Vergleich zu 0.97 für A resultiert. Die S-förmige Struktur für Faser E hat mit 0.36 einen niedrigeren Ω_2 -Wert als die Faser F mit 0.44. Dieser Unterschied ergibt sich aus der größeren Abweichung von der Kreisform durch die beiden Einbuchtungen bei der S-Form. Die schwarze Linie beschreibt den gültigen Bereich der Ω -Werte.

In Abb. 7.6 sind die Häufigkeitsverteilungen der Ω -Werte für die α -Fasern der Schnittbilder aus Abb. 7.3 als Histogramme dargestellt. Als Klassengröße wird dabei ein Wert von 0.05 verwendet. Die Häufigkeiten sind zusätzlich mit Farben entsprechend den Farbbalken rechts in den Diagrammen markiert.

Die Verteilung der α -Fasern des Systems ID (Abb. 7.3(a)) ist in Abb. 7.6(a) dargestellt. Das Histogramm zeigt ein Maximum von 64 % für Fasern mit Ω -Werten von 0.95 bis 1.0, was wenig verzerrten, annähernd kreisförmigen Strukturen entspricht. Dies reflektiert die hexagonalen Strukturen im Diagramm in Abb. 7.6(a). Die Verteilung der anderen auftretenden Klassen ist durch die Übergangszenen verursacht, die sich zwischen den unterschiedlich ausgerichteten hexagonalen Strukturen ausbilden.

Auch bei der Verteilung der α -Fasern von S1, geplottet in Abb. 7.6(b), tritt ein Maximum für

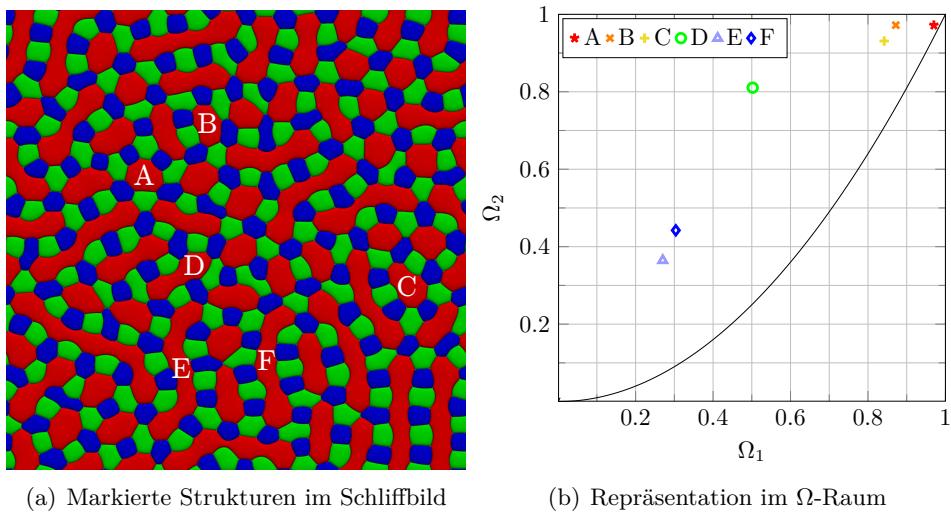


Abbildung 7.5.: Vergleich der Ω -Werte ausgewählter α -Fasern eines Schliffbildes des Systems S1 zur Veranschaulichung der geometrischen Bedeutung der Methode zur Morphologieklassifizierung, basierend auf den Flächenträgheitsmomenten 2. Ordnung. Die schwarze Linie grenzt den gültigen Bereich der Ω -Werte ab.

die Ω -Werte von 0.95 bis 1.0 auf. Dieses ist mit 19 % aber schwächer ausgeprägt als für das System ID. Die Werte sind stärker im Ω -Raum verteilt. Insbesondere tritt ein höherer Anteil von Fasern mit Ω_1 - und Ω_2 -Werten kleiner als 0.5 auf. Diese Verteilung spiegelt das Auftreten von längeren Fasern bzw. Lamellen zwischen den β - und γ -Ketten quantitativ wider.

Für das System S2 sind die Ω -Werte der α -Fasern in Abb. 7.6(c) abgebildet. Auch bei diesem System tritt ein Maximum für Werte im Bereich von 0.95 bis 1.0 auf. Das Maximum hat einen Wert von 59 % und die Streuung der Ω -Werte im Bereich von 0.0 bis 0.95 ist weniger stark ausgeprägt als für die Systeme ID und S1. Dies spiegelt das Auftreten von relativ runden bzw. quadratischen α -Fasern in Abb. 7.3(c) wider. Durch den geringeren Phasenanteil von α treten keine Übergangszonen mit verzerrten Hexagonen auf.

Diese Ergebnisse zeigen, dass eine Veränderung der Gleichgewichtskonzentrationen und daraus folgend der Phasenanteile der drei Festphasen neben der räumlichen Anordnung der Fasern zusätzlich mit einer Veränderung der Faserform in Schnittbildern parallel zur Erstarrungsfront einhergeht. Dies verdeutlicht, dass für eine Untersuchung realer Systeme und dem Vergleich mit experimentellen Schliffbildern die Modellierung der Gleichgewichtskonzentrationen und Phasenanteile wichtig ist. Diese Erkenntnisse werden in Kapitel 8 zur Untersuchung des ternären eutektischen Systems Al-Ag-Cu verwendet.

Bei der Variation der Gleichgewichtskonzentrationen durch ein Verschieben der Gibbs-Energien werden die Gibbs-Thomson-Koeffizienten verändert. Zusätzlich ist diese Art der Variation nur in Simulationen und nicht in Experimenten möglich, was einen Vergleich mit Experimenten erschwert.

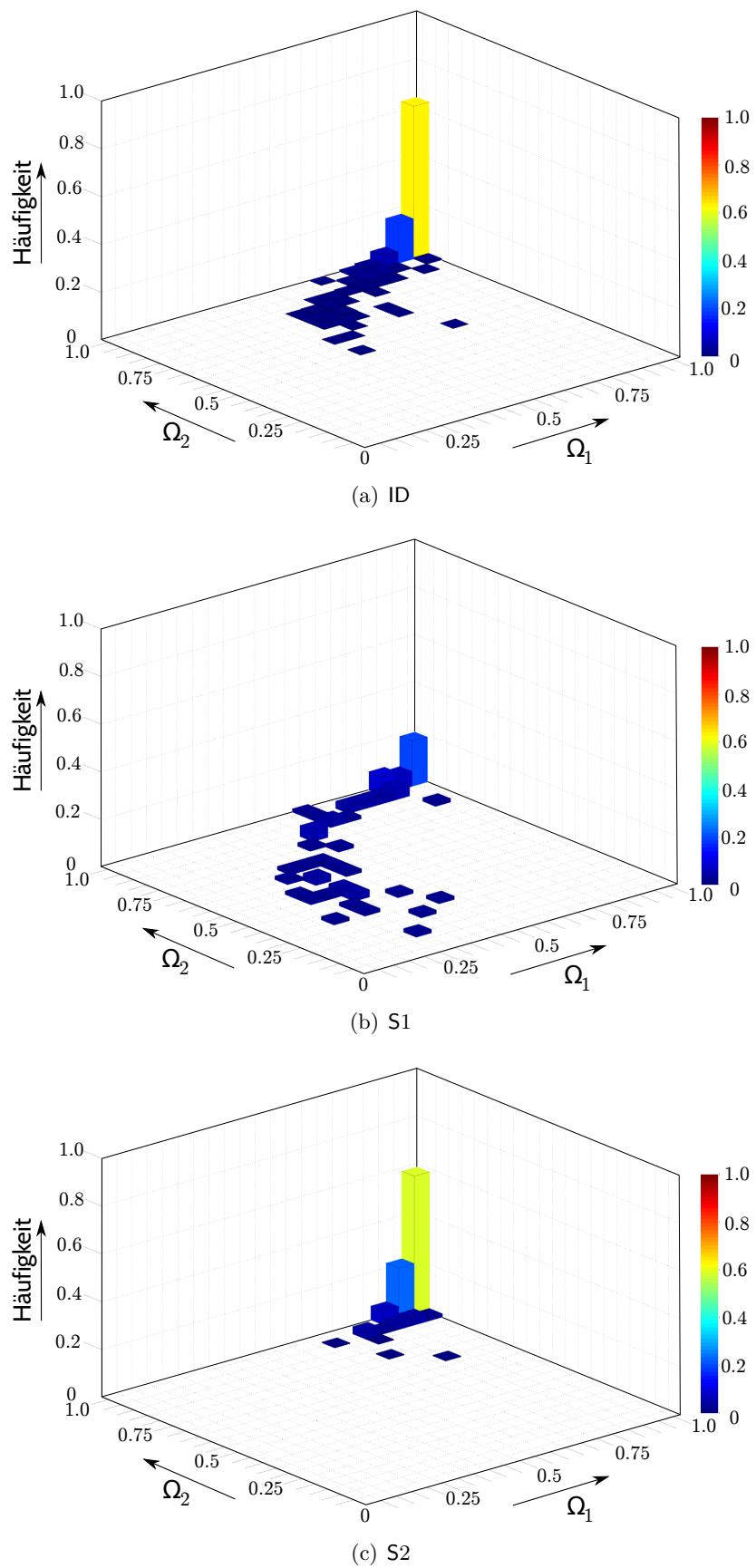


Abbildung 7.6.: Darstellung der Häufigkeitsverteilungen der Ω -Werte für die α -Fasern der Schnittbilder aus Abb. 7.3 als Histogramm. Als Klassengröße wird dabei ein Wert von 0.05 verwendet und die Häufigkeiten sind zusätzlich mit Farben entsprechend den Farbbalken rechts von den Diagrammen markiert.

7.2. Einfluss von Grenzflächenenergien auf die auftretenden Muster

Im Folgenden wird der Einfluss der Grenzflächenenergien auf die auftretenden Muster parallel zur Erstarrungsfront untersucht. Dazu wird ein System S3, ähnlich wie S1 aus dem vorherigen Abschnitt, aber mit ungleichen Oberflächenenergien verwendet. Während der gerichteten Erstarrung dieses Systems, welches ebenfalls in der Publikation [243] verwendet wurde, tritt verkipptes Wachstums in 2D und Spiralwachstum in 3D auf. Verkipptes Wachstum ist dabei definiert als das Auftreten eines konstanten Winkels größer null zwischen den Fest-Fest Grenzflächen und der vom Temperaturgradienten vorgegebenen Wachstumsrichtung. Die Simulationsparameter des Systems S3 sind in Tabelle 7.3 zusammengefasst.

Tabelle 7.3.: Zusammenfassung der verwendeten Simulationsparameter des Datensatzes S3

Parameter	Simulationswert	Physikalischer Wert
<i>Numerische Parameter</i>		
dx	1.0	$3.89 \cdot 10^{-7}$ m
dt	0.005	$5.00 \cdot 10^{-7}$ s
ϵ	4.0	$1.56 \cdot 10^{-6}$ m
$\gamma_{\alpha\beta\gamma}$	2.6	1.3 J/m^2
<i>Physikalische Parameter</i>		
γ	Phase $\begin{matrix} \alpha & \alpha \\ \beta & \beta \\ \gamma & \gamma \\ liq & liq \end{matrix}$	$\begin{bmatrix} - & 0.3 & 0.2 & 0.1 \\ 0.3 & - & 0.2 & 0.2 \\ 0.2 & 0.2 & - & 0.2 \\ 0.1 & 0.2 & 0.2 & - \end{bmatrix}$
D	3.0	$4.55 \cdot 10^{-9}$ m ² /s
c_{liq}	$0.\overline{3}, 0.\overline{3}, 0.\overline{3}$ (A, B, C)	$0.\overline{3}, 0.\overline{3}, 0.\overline{3}$ Molfraktion (A, B, C)
Phasenfraktionen von α, β, γ	0.4375, 0.2812, 0.2812	0.4375, 0.2812, 0.2812
$\Xi_\alpha, \xi_\alpha, X_\alpha$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix} -2.8 \\ -2.0 \end{bmatrix}, \quad 1.04$	
$\Xi_\beta, \xi_\beta, X_\beta$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix} -2.0 \\ -2.8 \end{bmatrix}, \quad 1.04$	
$\Xi_\gamma, \xi_\gamma, X_\gamma$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix} -1.2 \\ -1.2 \end{bmatrix}, \quad 0.24$	
$\Xi_\ell, \xi_\ell, X_\ell$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix} -2.0 \\ -2.0 \end{bmatrix}, \quad 3.\overline{3} - 2.\overline{6}T$	
<i>Prozessparameter</i>		
T an T_{eut}	1.0	773.6 K
∇T	10^{-4}	200 K/mm

7.2.1. Untersuchung des Verkipfungswinkels in zweidimensionalen Simulationen

Verkipptes Wachstum während der gerichteten Erstarrung von Eutektika wird erstmals experimentell von Faivre et al. in [349] untersucht. Diese Art von Wachstum, bei dem die Lamellen in einem definierten Winkel zur vom Temperaturgradienten vorgegebenen Erstarrungsrichtung wachsen, kann aus unterschiedlichen Gründen während des zweidimensionalen Wachstums von Eutektika auftreten. Das Auftreten von verkipptem Wachstum kann durch Anisotropie in den Oberflächenenergien hervorgerufen werden, durch die es zu einer Entstehung von Grenzflächen mit niedrigerer Energie abweichend zur Wachstumsrichtung kommt [219, 224, 228, 234, 235, 238, 239, 299]. Durch Phasenfeldsimulationen von Apel et al. [242, 350] wird gezeigt, dass verkipptes Wachstum auch bei dreiphasigen Eutektika mit gleichen, isotropen Oberflächenenergien auftreten kann. Dieser Mechanismus ist konzentrationsgetrieben und resultiert aus unsymmetrischen Konzentrationsprofilen direkt vor der Erstarrungsfront. In [243] wird mit Phasenfeldsimulationen gezeigt, dass es zu einem verkippten Wachstum für dreiphasige ternäre Eutektika kommen kann, wenn die Grenzflächenenergien in bestimmten Verhältnissen gewählt werden.

Im Folgenden wird der in [243] beschriebene Mechanismus mit dem System S3 für die Lamellenanordnung α - β - γ weiter untersucht. Die Grenzflächenenergien in diesem System sind ungleich, aber isotrop. In zweidimensionalen Simulationen des Systems S3 tritt ein verkipptes Wachstum der drei Festphasen auf. Da, wie in [243] gezeigt, die Wachstumsgeschwindigkeit als wichtiger Prozessparameter den Verkipfungswinkel θ beeinflusst, wird eine systematische Variation der Geschwindigkeiten für verschiedene Lamellenbreiten durchgeführt. Die untersuchten Wachstumsgeschwindigkeiten des Temperaturgradienten für den Datensatz S3 sind in Tabelle 7.4 dargestellt.

Tabelle 7.4.: Übersicht der untersuchten Wachstumsgeschwindigkeiten des Temperaturgradienten für den Datensatz S3

Parameter	Simulationswert in Zellen pro Zeitschritt	Physikalischer Wert in $\mu\text{m}/\text{s}$
v_1	$1.49 \cdot 10^{-3}$	5.78
v_2	$2.16 \cdot 10^{-3}$	8.39
v_3	$2.69 \cdot 10^{-3}$	10.45
v_4	$2.83 \cdot 10^{-3}$	11.00
v_5	$2.97 \cdot 10^{-3}$	11.55
v_6	$3.09 \cdot 10^{-3}$	12.00
v_7	$3.40 \cdot 10^{-3}$	13.20

In Abb. 7.7 ist der Verkipfungswinkel über der lamellaren Breite λ für die sieben untersuchten Geschwindigkeiten aufgetragen. Die lamellare Breite wurde von 30 bis 130 Zellen mit einer Schrittbreite von 5 Zellen variiert. Die in Abb. 7.7 dargestellten Simulationsergebnisse zeigen die Simulationen, bei denen dreiphasiges Wachstum auftritt.

Für ein größer werdendes λ wächst der Verkipfungswinkel, an bis ein lokales Maximum auftritt, wie für die Geschwindigkeiten v_2 bis v_7 im untersuchten Bereich sichtbar wird. Anschließend nehmen die Werte für θ wieder ab. Dieses Verhalten ist in Übereinstimmung mit

den Ergebnissen in [243]. Für die Geschwindigkeit v_1 tritt dieses Maximum im untersuchten Intervall nicht auf.

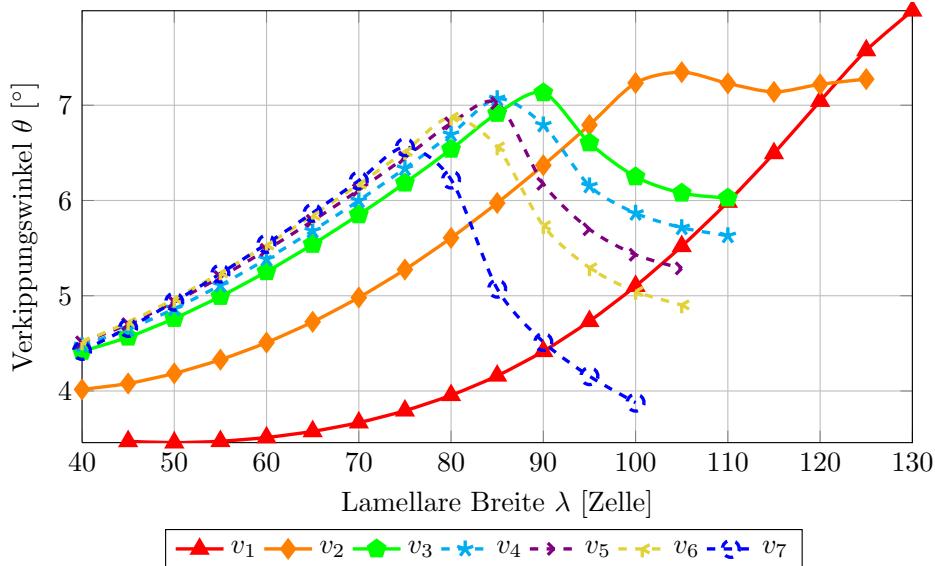


Abbildung 7.7.: Verkippungswinkel θ aufgetragen über der lamellaren Breite λ der Phasenordnung α - β - γ für verschiedene Wachstumsgeschwindigkeiten. Die Werte der Geschwindigkeiten sind in Tabelle 7.4 angegeben.

In Abb. 7.8 sind die lokalen Maxima der Verkippungswinkel über der Wachstumsgeschwindigkeit als orange Punkte aufgetragen. Mit steigender Geschwindigkeit nimmt der maximale Verkippungswinkel ab. Dabei folgen die maximalen Verkippungswinkel ungefähr einem parabolischen Verlauf. Dies wird verdeutlicht durch die Ausgleichsrechnung mit einem quadratischen Ansatz und der Methode der kleinsten Fehlerquadrate, die als schwarze Kurve in Abb. 7.8 dargestellt ist. Dieser Verlauf kann qualitativ als Folge der größeren treibenden Kräfte für hohe Geschwindigkeiten gedeutet werden, die als starke Kraft in Richtung der Temperaturgradienten vorgegebenen Richtung wirkt. Weiterhin werden durch die Young-Herring-Gleichung die Winkel an den Tripelpunkten verändert, was zu einem geringeren Verkippungswinkel für höhere Geschwindigkeiten führt [238]. Die Ergebnisse zeigen, dass für einen hohen Verkippungswinkel niedrige Geschwindigkeiten vorteilhaft sind.

7.2.2. Untersuchung von Spiralwachstum in dreidimensionalen Simulationen

In [15] wird von Strukturen in Schliffbildern parallel zur Erstarrungsrichtung im System Al-Ag-Cu berichtet, die möglicherweise Spiralen zwei umeinander kreisende Lamellen, eingebettet in eine Matrix, zeigen. Eine Abbildung ähnlich der in [15] ist in Abb. 7.9 dargestellt. Dieses Verhalten von zwei Fasern, die abwechselnd, in eine Matrixphase eingebettet, auftreten, ist ebenfalls in [351] für das System Al-Ag-Cu publiziert. Ein Nachweis ob es sich wirklich um Spiralwachstum in den Experimenten handelt gestaltet sich dabei schwierig, da Schnittbilder nur zweidimensionale Abbilder der Mikrostruktur ermöglichen. Simulationen erlauben dagegen eine dreidimensionale Darstellung der Mikrostruktur.

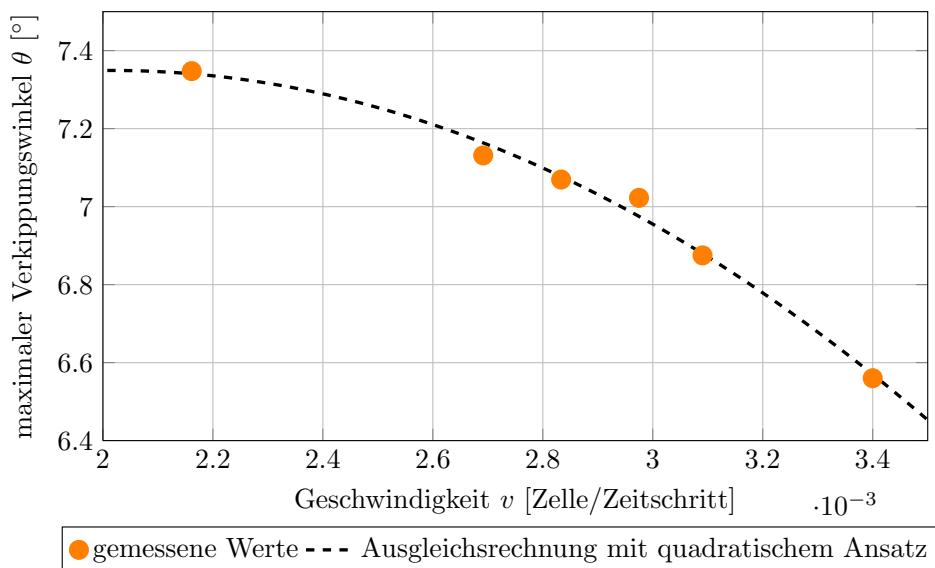


Abbildung 7.8.: Darstellung der lokalen Maxima der Verkippungswinkel über der Wachstumsgeschwindigkeit (orange Punkte) und eine Ausgleichsrechnung mit einem quadratischen Ansatz und der Methode der kleinsten Fehlerquadrate (schwarze Kurve).

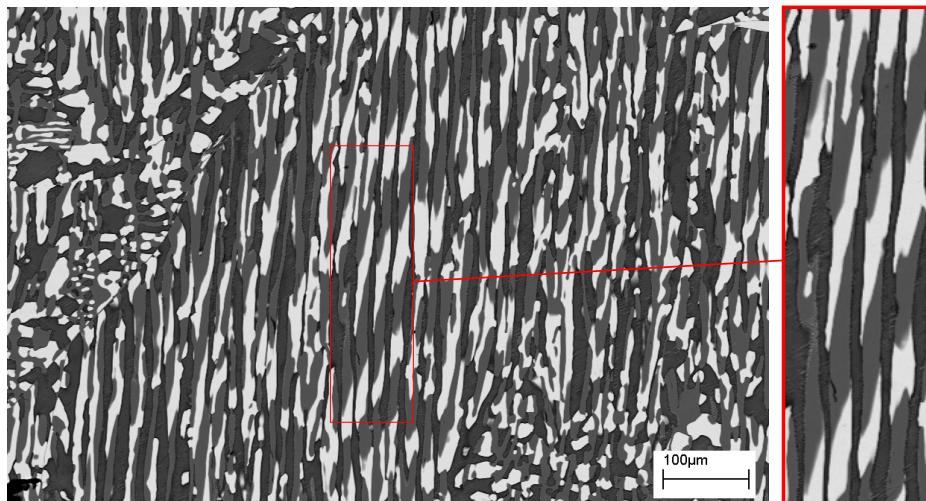


Abbildung 7.9.: Experimentelles Schliffbild parallel zur Erstarrungsrichtung von gerichtet erstarrtem, ternären eutektischen Al-Ag-Cu. Die beiden Phasen, von denen vermutet wird, dass sie umeinander kreisen, sind Ag_2Al (weiß) und Al_2Cu (grau), eingebettet in eine dunkelgraue Al-Matrix. Die vermuteten Spiralen sind rechts vergrößert dargestellt. Das Bild stammt von A. Genau, University of Alabama in Birmingham, Alabama, USA und ist ebenfalls in [243] publiziert.

In [243] wird für das ternäre eutektische System S3 gezeigt, dass gekipptes Wachstum in 2D zu Spiralwachstum in 3D führen kann. Das Spiralwachstum tritt dabei als von umeinander rotierenden Lamellen von β - und γ -Fasern, eingebettet in eine α -Matrix, auf. Um dieses Spiralwachstum und den Einfluss der Wachstumsgeschwindigkeit weiter zu untersuchen, wurden dreidimensionale Phasenfeldsimulationen mit einer Basis-Größe von 800×800 Zellen im System S3 und den in Tabelle 7.4 dargestellten Geschwindigkeiten für jeweils 5 Millionen Zeitschritte durchgeführt. Alle Simulationen liefen für ca. 18 Stunden auf 13 600 CPUs auf dem SuperMUC-Cluster des Leibniz-Rechenzentrums München.

Ähnlich wie in [243] wird auch bei dieser Simulationsserie ein spiralförmiges Wachstum umeinander rotierender Lamellen von β - und γ -Fasern, eingebettet in eine α -Matrix, beobachtet. Das Auftreten von Spiralwachstum lässt sich mit Hilfe der Bewegung der Schwerpunkte der Fasern detektieren. Im linken Teil von Abb. 7.10 sind die Schwerpunkte der γ -Fasern in der Basis-Ebene für die Simulation des Datensatzes S3 mit der Geschwindigkeit v_2 dargestellt. Die Farbe gibt die Wachstumshöhe entsprechend des Farbbalkens rechts in Abb. 7.10 an. In der Vergrößerung in Abb. 7.10 ist die Umgebung der in Abb. 7.11 gezeigten Spirale hervorgehoben. Rund um die γ -Fasern, die das Zentrum der Spirale bilden, drehen sich weitere γ -Fasern.

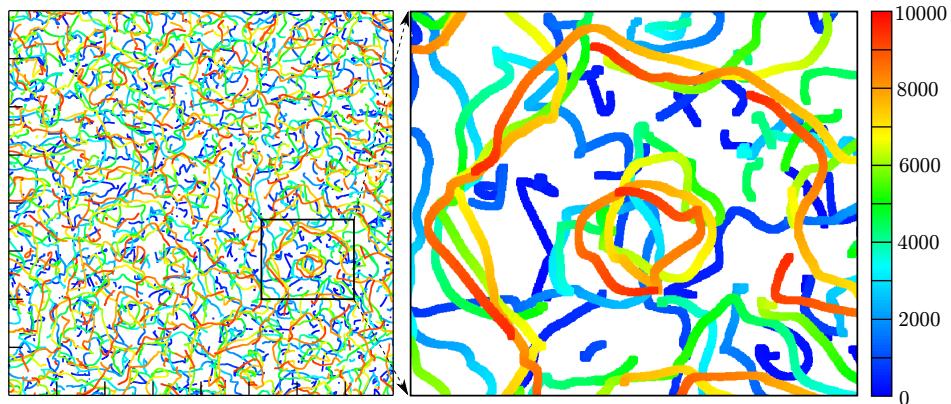


Abbildung 7.10.: Darstellung der Schwerpunkte der γ -Fasern in der Basis-Ebene für die Simulation des Datensatzes S3 mit der Geschwindigkeit v_2 . Die Farbe der Fasern gibt die Wachstumshöhe entsprechend des Farbbalkens im Bild an. In der Vergrößerung ist die Umgebung der in Abb. 7.11 gezeigten Spirale zu sehen.

In Abb. 7.11 (a) ist die gesamte dreidimensionale Mikrostruktur mit der Wachstumsrichtung von unten nach oben als vergröbertes Oberflächennetz zu sehen. Während des Wachstums bilden sich Inseln von β - und γ -Fasern aus. Eine dieser Inseln besteht aus einer Spiralstruktur, die zusammen mit benachbarten γ -Fasern in Abb. 7.11 (b) freigestellt und in hellblau hervorgehoben ist. In Abb. 7.11 (c) sind nur die γ -Fasern der sich im Zentrum befindenden Spirale, bestehend aus γ -Fasern, die um eine β -Faser rotieren, gezeigt.

Zur weiteren Untersuchung des Spiralwachstums sind in Abb. 7.12 Ausschnitte aus Schnittbildern senkrecht zur Erstarrungsrichtung, in der Nähe der Wachstumsfront, nach jeweils 200 000 Zeitschritten, ausgehend vom Zeitschritt 3 740 000 abgebildet. Wie in Abb. 7.11 gezeigt, bildet sich um die sich im Zentrum befindende Spirale zusätzlich eine umgebende Anordnung aus Paaren von β - und γ -Fasern.

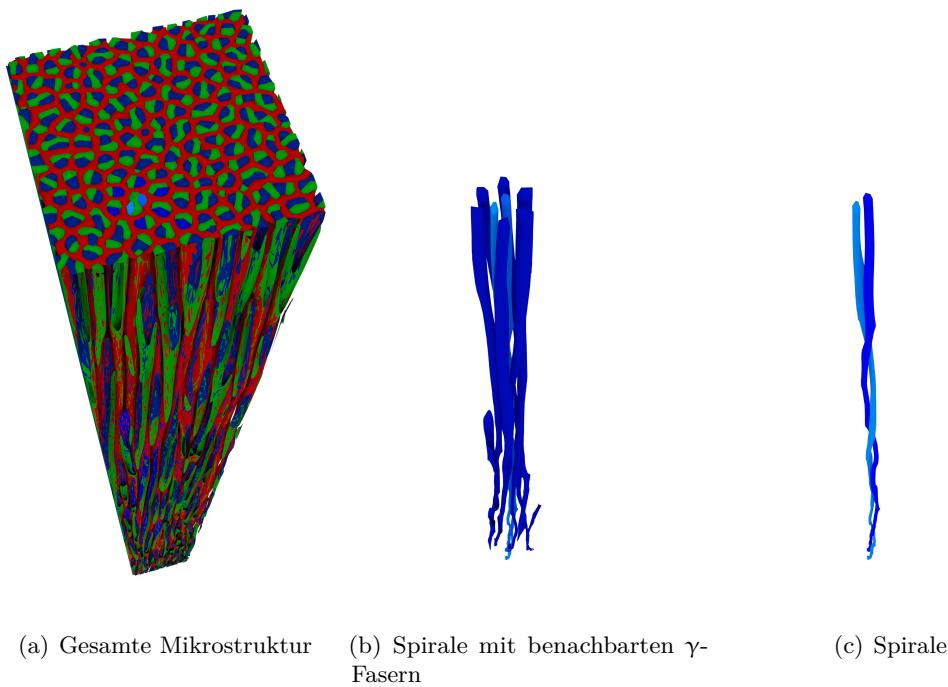


Abbildung 7.11.: Beispiel für Spiralwachstum in Phasenfeldsimulationen des ternären eutektischen Systems S3. In (a) ist die gesamte 3D-Mikrostruktur der Simulation mit der Geschwindigkeit v_2 dargestellt. In diesem Volumen bilden sich verschiedene Spiralen, wie durch die in (b) zusammen mit benachbarten γ -Fasern freigestellte Struktur deutlich wird. In (c) sind nur die γ -Fasern der sich im Zentrum befindenden Spirale, bestehend aus γ -Fasern, die um eine β -Faser rotierenden, gezeigt.

Im Folgenden wird ein auf dem Auftreten von verkipptem Wachstum basierender Erklärungsansatz für den Mechanismus des Wachstums von Spiralen vorgestellt. Eine schematische Anordnung der rotierenden Fasern in den Simulationen ist in Abb. 7.13 dargestellt.

Im oberen Teil des Bildes ist die im Zentrum befindliche Spirale mit den beiden um β herum angeordneten γ -Fasern dargestellt. Im mittleren und unteren Teil sind zusätzlich die benachbarten Fasern zu sehen. Eingebettet in die Matrixphase α entwickelt sich die Spirale als eine \mathcal{S} -förmige Struktur der β -Phase mit zwei benachbarten γ -Fasern. Die γ -Fasern befinden sich rotationssymmetrisch in den konkaven Einbuchtungen der \mathcal{S} -Struktur. Bei dieser räumlichen Anordnung ergeben sich zwei Paare von $\alpha - \beta - \gamma$ -Anordnungen, äquivalent zum zweidimensionalen verkippten Wachstum. Es kann vermutet werden, dass der gleiche Mechanismus auftritt, der in 2D zu einem verkippten Wachstum der Fasern führt. Aus der gegensätzlichen Bewegung der Verkippungen folgt eine Rotationsbewegung.

Zusätzlich rotieren Paare von β - und γ -Fasern um die sich im Zentrum befindende Spirale. Für diese Kombination von Fasern ergeben sich ebenfalls $\alpha - \beta - \gamma$ -Anordnungen, äquivalent zum zweidimensionalen verkippten Wachstum. In Kombination mit der Nachbarschaftsumgebung resultiert diese Anordnung der Fasern ebenfalls in einer Rotationsbewegung. Im Zusammenspiel mit der Diffusion und den daraus folgenden Konzentrationsflüssen stabilisiert dieser äußere

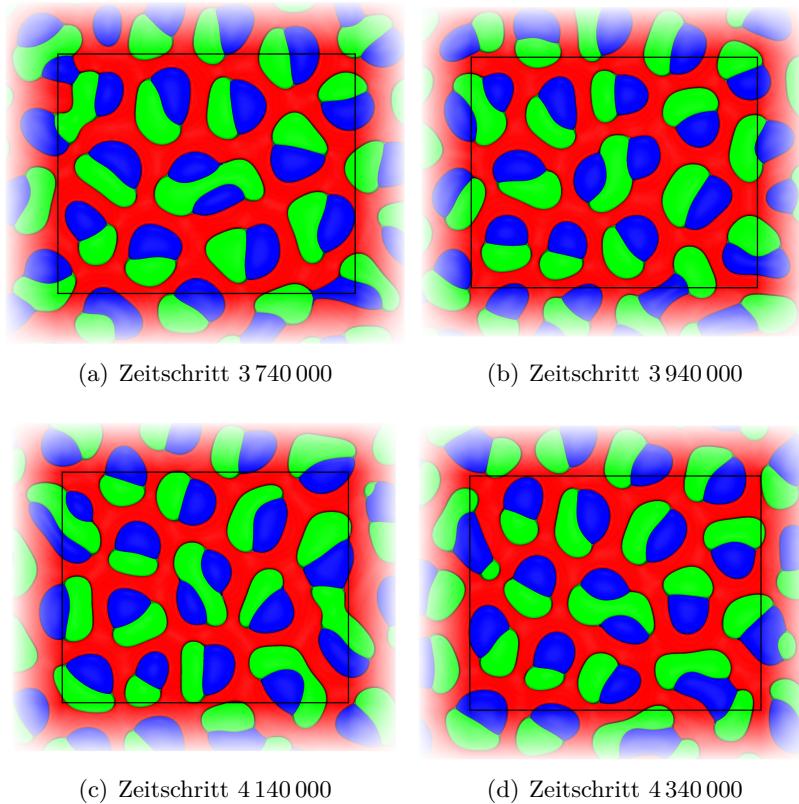


Abbildung 7.12.: Ausschnitte aus Schnittbildern senkrecht zur Erstarrungsrichtung, in der Nähe der Wachstumsfront, nach jeweils 200 000 Zeitschritten, ausgehend vom Zeitschritt 3 740 000. Die Schnittbilder dienen zur Verdeutlichung des Spiralwachstums sowie der Rotation von β - γ -Faserpaaren um die sich im Zentrum befindende Spirale.

Ring die Spirale im Zentrum. Dies zeigt sich darin, dass eine Spiralanordnung ohne äußeren Ring in Richtung eines Gleichgewichts mit einer achsensymmetrischen Anordnung der beiden γ -Fasern um die β -Faser, wie auch in [243] gezeigt, strebt. Erst wenn dieses Gleichgewicht durch benachbarte Fasern gestört wird, kommt es zu einem weiteren Spiralwachstum.

Die Kombination von Spiralwachstum im Zentrum und einem äußeren rotierenden Ring liefert auch einen Erklärungsansatz für das Auftreten von mehreren parallelen, möglicherweise spiralartigen Strukturen in Abb. 7.9. Bei der Anordnung von mehreren Spiralen nebeneinander ohne äußeren Ring tritt kein stabiles Spiralwachstum auf. Diese Art von Anordnung lässt sich relativ einfach durch eine Spirale in einem Gebiet mit periodischen Randbedingungen parallel zur Erstarrungsrichtung simulieren. Bei diesem Simulationsaufbau entwickelt sich eine stabile Anordnung der drei Fasern als Kettenstrukturen mit zwei Symmetrieebenen senkrecht zur Wachstumsrichtung. Wächst die Spirale dagegen in einer Anordnung mit äußerem Ring, so ergibt sich in Schnittbildern parallel zur Wachstumsrichtung eine Struktur, ähnlich der im unteren Teil von Abb. 7.13.

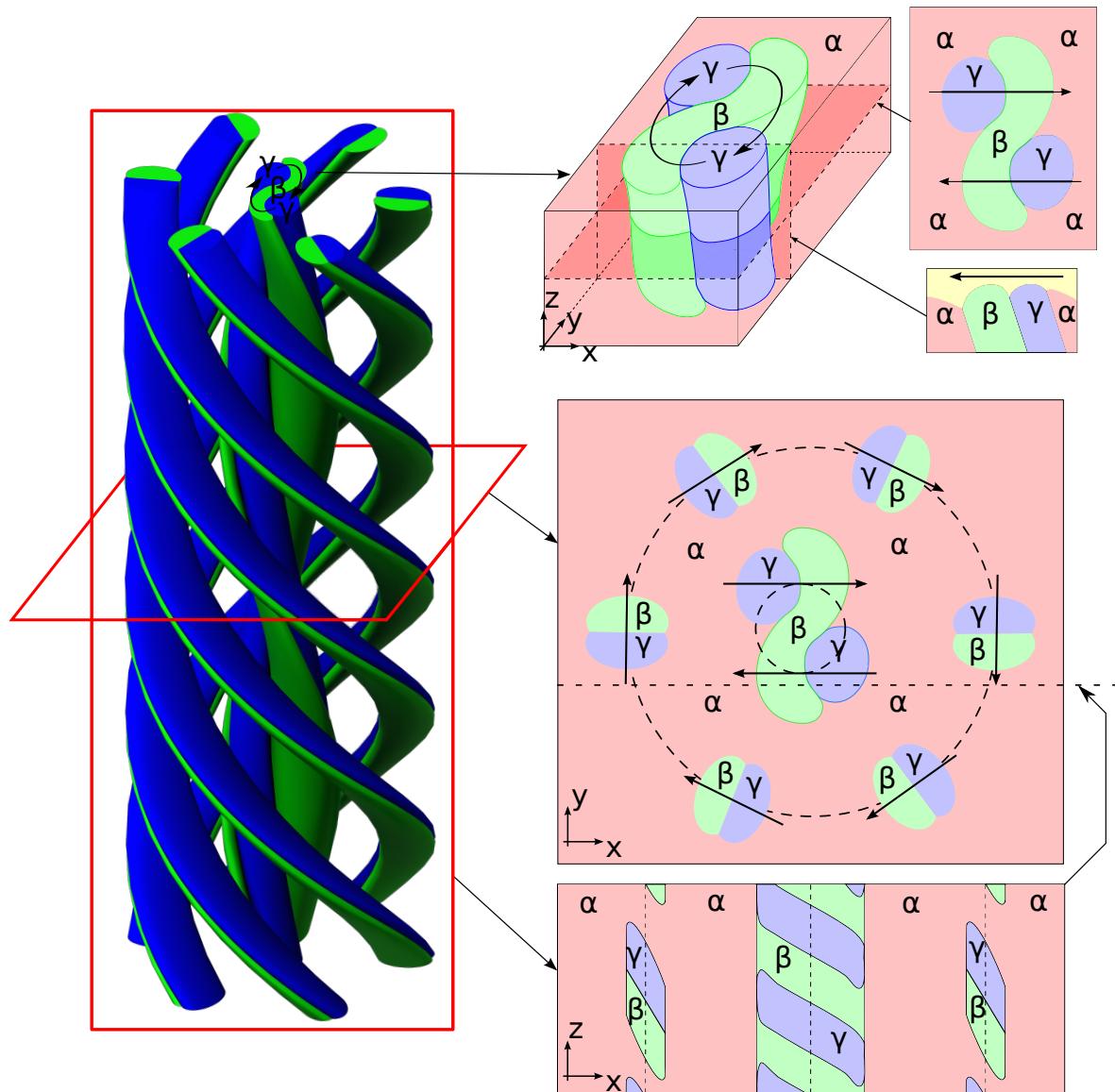


Abbildung 7.13.: Schematische Darstellung der räumlichen Anordnung der rotierenden Fasern in den Simulationen. Neben der sich im Zentrum befindenden Spirale im oberen Teil der Abbildung ist zusätzlich die Spirale mit einem äußerem Ring von β - und γ -Fasern in einem Schnitt senkrecht zur Erstarrungsrichtung (mittlerer Teil) wie auch parallel dazu (unterer Teil) abgebildet.

Zur Quantifizierung des Spiralwachstums ist in Abbildung Abb. 7.14 der Drehwinkel der Spiralen pro Zelle über der Erstarrungsgeschwindigkeit aufgetragen. Dabei repräsentieren die orangen Punkte die simulierten Geschwindigkeiten des Systems S3 aus Tabelle 7.4. Die Werte folgen näherungsweise einem quadratischen Verlauf, wie durch die schwarze Kurve, die eine Ausgleichsrechnung mit einem quadratischen Ansatz und der Methode der kleinsten Fehlerquadrate darstellt, verdeutlicht. Die in Abb. 7.11 abgebildete Spirale aus der Simulation mit der Geschwindigkeit $v_2 = 2.16 \cdot 10^{-3}$ Zellen pro Zeitschritt liegt dabei links vom Maximum und die in [243] analysierte Spirale mit der Geschwindigkeit $v_4 = 2.83 \cdot 10^{-3}$ Zellen pro Zeitschritt leicht rechts.

Die Ergebnisse der 2D-Simulationen in Abb. 7.8 zeigen, dass für ein verkipptes Wachstum kleinere Geschwindigkeiten vorteilhaft sind, was als Folge der kleineren treibenden Kräfte durch den Temperaturgradienten gedeutet werden kann. Allerdings sind bei kleineren Geschwindigkeiten auch die Bedingungen für Diffusion besser und daher ist die Triebkraft zur Umordnung der Mikrostruktur geringer. Das Zusammenspiel von treibenden Kräften durch den Temperaturgradienten bzw. die Unterkühlung einerseits und der Diffusion der Masse in der Schmelze andererseits liefert daher einen Erklärungsansatz für den in Abb. 7.14 gezeigten Verlauf der Kurve.

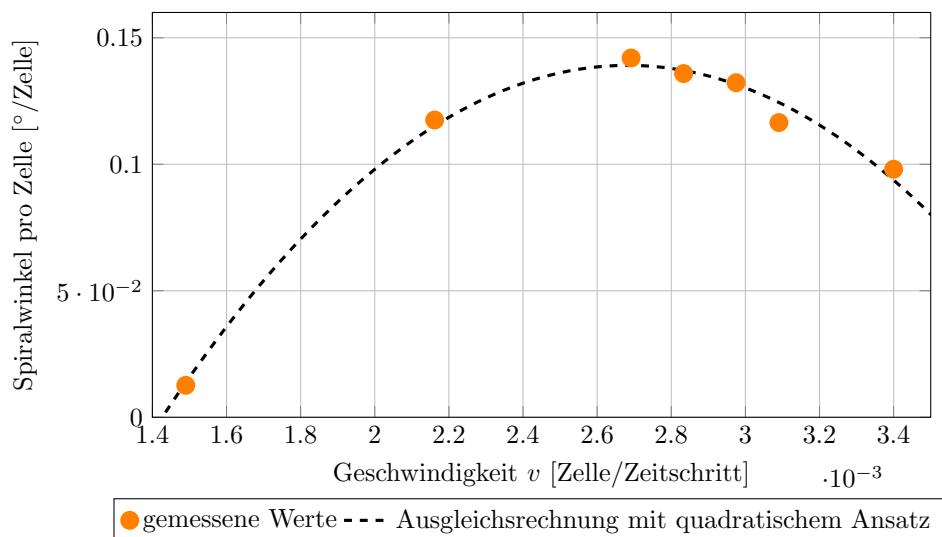


Abbildung 7.14.: Darstellung des Drehwinkels der Spiralen pro Zelle über der Erstarrungsgeschwindigkeit. Die orangen Punkte stellen die simulierten Geschwindigkeiten des Systems S3 dar und die schwarze Kurve eine Ausgleichsrechnung mit einem quadratischen Ansatz und der Methode der kleinsten Fehlerquadrate.

7.2.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Kapitel wurde der Einfluss unterschiedlicher Gleichgewichtskonzentrationen und unterschiedlicher Grenzflächenenergien auf die auftretenden Muster während der gerichteten Erstarrung idealisierter eutektischer Systeme untersucht.

Aus den Ergebnissen können folgende Schlussfolgerungen gezogen werden:

- (i) Bei einer Variation der Gleichgewichtskonzentrationen und daraus folgend der Phasenanteile der drei Festphasen tritt neben einer Veränderung der räumlichen Anordnung der Fasern zusätzlich eine Veränderung der Faserform in Schnittbildern parallel zur Erstarrungsfront auf.
- (ii) In 2D-Simulationen kann für bestimmte Grenzflächenenergien verkipptes Wachstum in einem ternären eutektischen System mit isotropen, aber ungleichen Oberflächenenergien auftreten, was in Übereinstimmung mit den Ergebnissen in [243] ist.
- (iii) Für höhere Geschwindigkeiten nimmt der maximale Verkipfungswinkel ab, was als Folge höherer treibender Kräfte durch den Temperaturgradienten erklärt werden kann.
- (iv) In den 3D-Simulationen wurde Spiralwachstum, ähnlich wie in [243], beobachtet. Dabei trat allerdings ein äußerer Ring von rotierenden Fasern um das Zentrum der Spirale auf. Die gezeigten Ergebnisse deuten darauf hin, dass diese Anordnung im Zusammenspiel mit der Diffusion und den daraus folgenden Konzentrationsflüssen die Spirale in der Mitte der Struktur stabilisiert.
- (vi) Abhängig von der Erstarrungsgeschwindigkeit gibt es einen Bereich in dem relativ hohe Spiralwinkel pro Zelle auftreten. Dies lässt sich aus einem Zusammenspiel von treibenden Kräften durch den Temperaturgradienten bzw. die Unterkühlung und der Diffusion der Masse in der Schmelze erklären. Diese Beobachtung liefert eine Erklärung dafür, dass spiralartige Strukturen in experimentellen Schliffbildern ternärer Eutektika verhältnismäßig selten beobachtet werden.

Auf Basis der gewonnenen Erkenntnisse der gerichteten Erstarrung idealer und idealisierter ternärer eutektischer Systeme wird im Folgenden die Musterbildung im System Al-Ag-Cu untersucht.

8. Al-Ag-Cu

Im folgenden Kapitel wird die gerichtete Erstarrung des Systems Al-Ag-Cu in der Umgebung des ternären eutektischen Punktes untersucht. Dieses System besitzt mit 773.6 K eine relativ niedrige ternäre eutektische Temperatur und in Schliffbildern bei Raumtemperatur haben die drei Festphasen Al, Ag_2Al und Al_2Cu annähernd gleiche Phasenanteile, weshalb es häufig für experimentelle Untersuchungen genutzt wird.

Erste experimentelle Analysen ternärer eutektischer Systeme, u.a. von Al-Ag-Cu, wurden von Cooksey und Hellawell [14] im Jahre 1967 durchgeführt. Allerdings war die Erstarrungsgeschwindigkeit im Vergleich zu aktuelleren experimentellen Untersuchungen um Größenordnungen größer und die Zusammensetzung der Schmelze war nicht-eutektisch. Der Einfluss verschiedener Erstarrungsgeschwindigkeiten im System Al-Ag-Cu wird von McCartney et al. in [351] systematisch betrachtet.

Eine thermodynamische Beschreibung des Systems ist von Witusiewicz et al. in [30, 31] ausgearbeitet und als CALPHAD-Datenbank veröffentlicht. Eine Liquidusprojektion, die auf dieser CALPHAD-Datenbank basiert, mit dem in blau markierten ternären eutektischen Punkt E_{cal} , ist in Abb. 8.1(a) abgebildet. Zusätzlich ist in Abb. 8.1(b) die Liquidusfläche mit den binären Randsystemen dargestellt.

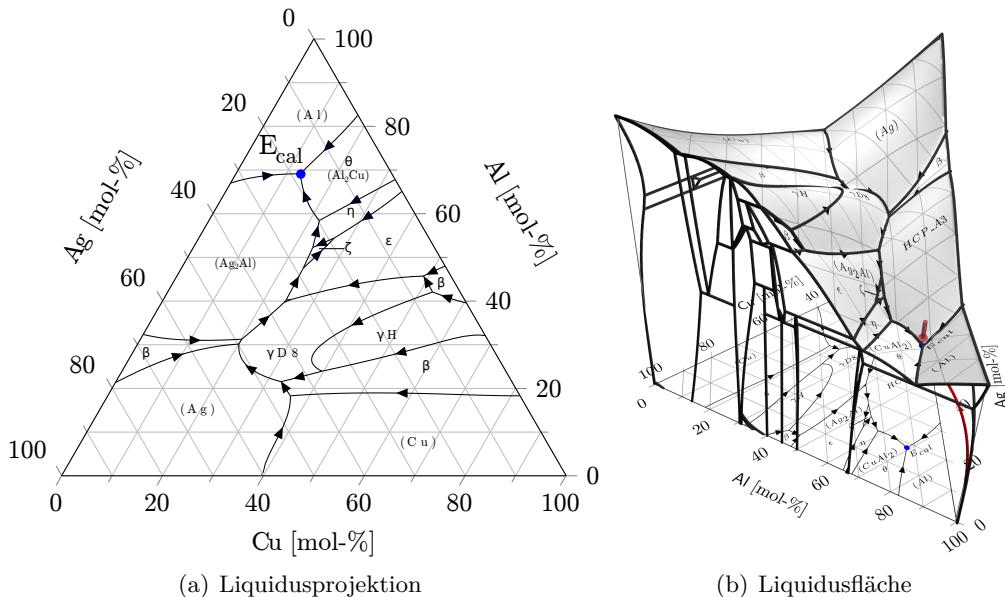


Abbildung 8.1.: Liquidusprojektion des Systems Al-Ag-Cu, basierend auf der CALPHAD-Datenbank [30, 31] (a) und die Liquidusfläche mit den binären Randsystemen (b). Der ternäre eutektische Punkt E_{cal} ist mit einem blauen Punkt markiert.

Eine Herausforderung bei der Analyse des Systems Al-Ag-Cu ist die relativ große Änderung der Löslichkeit von Ag in der Al-Phase bei der Abkühlung. Diese fällt von ungefähr 16.9% auf ca. 8% in einem Bereich von 20K unterhalb der ternären eutektischen Temperatur [15], was eine Veränderung der Mikrostruktur nach der Erstarrung zur Folge hat. Dieser Effekt tritt insbesondere während der gerichteten Erstarrung bei langsamem Geschwindigkeiten auf, da hierbei bessere Bedingungen für die Festphasendiffusion herrschen. Zur Untersuchung eutektischer Strukturen sind diese langsamem Geschwindigkeiten allerdings notwendig, um ein gekoppeltes Wachstum und eine näherungsweise planare Erstarrungsfront zu erreichen und somit die Bildung von dendritischen Strukturen zu verhindern. Als Folge dieser Mikrostrukturentwicklungsprozesse nach der Erstarrung weichen die Phasenanteile und die Zusammensetzungen der Phasen in gerichtet erstarrten Proben von den Gleichgewichtswerten bei der eutektischen Temperatur ab [15–17]. Die Mikrostruktur direkt nach der Erstarrung kann nur durch ein Abschrecken der Proben bewahrt und in Schliffbildern direkt vor der abgeschreckten Erstarrungsfront beobachtet werden, was allerdings einen hohen experimentellen Aufwand erfordert [254].

Die Simulation sowohl der Erstarrung, als auch der Mikrostrukturentwicklung nach der Erstarrung ist mit einem extrem hohen Rechenaufwand verbunden, da beide Prozesse auf unterschiedlichen Zeitskalen stattfinden. Die Diffusion in den Festphasen ist ca. um den Faktor 1000 langsamer als die Diffusion in der Schmelze [352]. Um sowohl die Mikrostruktur direkt nach der Erstarrung wie auch bei Raumtemperatur zu untersuchen, werden daher zwei verschiedene Parametersätze zur Simulation des Systems Al-Ag-Cu verwendet. Der erste Parametersatz **CAL** beschreibt die ternäre eutektische Zusammensetzung, welche als E_{cal} in Abb. 8.2(a) markiert ist. Um die Mikrostruktur nach der Festphasendiffusion zu erreichen, ohne die aufwendige Löslichkeitsänderung zu simulieren, wird der Parametersatz **EXP** verwendet. Für diesen Datensatz wurden die Gibbs-Energien so verschoben, dass die Simulationen die experimentell beobachteten Phasenanteile widerspiegeln. Die Zusammensetzung ist als E_{exp} in Abb. 8.2(b) markiert. Für eine eindeutige Zuordnung der Phasen wird in den Simulationen die Al-Phase in rot dargestellt, Ag_2Al in grün und Al_2Cu in blau. In den experimentellen Schliffbildern korrespondiert Al mit schwarz, Ag_2Al mit weiß und Al_2Cu mit grau in Übereinstimmung mit [15–18, 20, 21].

Zunächst werden in diesem Kapitel die Parameter der beiden Systeme vorgestellt und die Muster, die während der gerichteten Erstarrung am eutektischen Punkt entstehen, diskutiert. Da die Systeme ebenfalls in [38] und [70] verwendet werden, ist eine ähnliche Untersuchung der Muster auch in [38] publiziert. Daran anschließend folgt eine Bestimmung der notwendigen Gebietsgrößen für statistische Volumenelemente und der Anzahl der notwendigen Zeitschritte mit einer Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen. Weiterhin wird durch die Analyse ein quantitativer Vergleich zwischen den Simulationen und den Experimenten ermöglicht. Die Ergebnisse des Abschnittes basieren auf Resultaten, die auch in [70] veröffentlicht sind. In dem darauf folgenden Abschnitt werden numerische Jackson-Hunt-Analysen für verschiedene dreidimensionale Muster durchgeführt und die Ergebnisse des Kettenmusters werden, ähnlich wie in Kapitel 6, mit der Analytik verglichen. Durch den Vergleich mit großskaligen Simulationen liefern sie einen Erklärungsansatz für das Auftreten unterschiedlicher Muster in experimentellen Schliffbildern bei gleichen Prozessbedingungen. Anschließend wird die gerichtete Erstarrung bei nicht-eutektischen Zusammensetzungen der Schmelze untersucht, was einen weiteren Erklärungsansatz für das Auftreten der unterschiedlichen Muster liefert. Die Ergebnisse der Analyse nicht-eutektischer Zusammensetzungen wurde ebenfalls

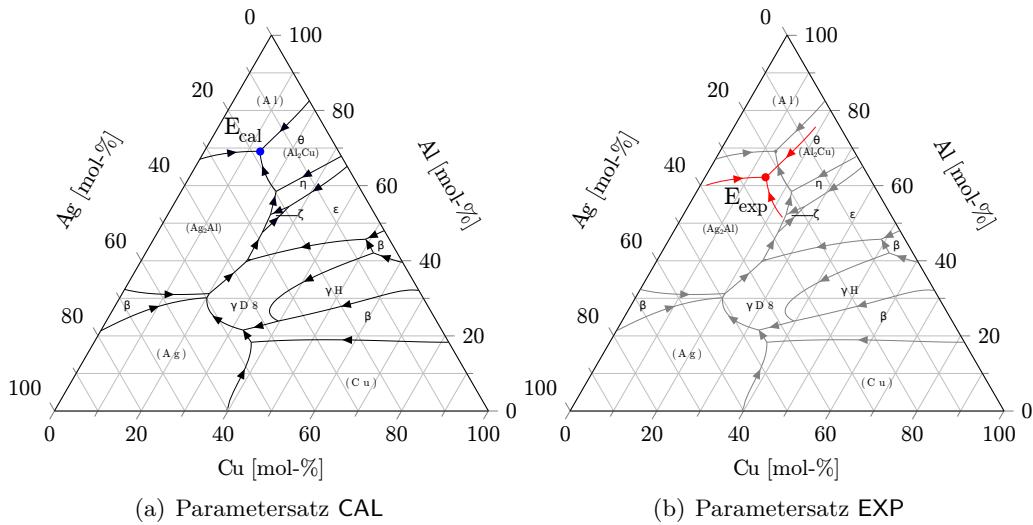


Abbildung 8.2.: Vergleich der Liquidusprojektionen der Datensätze CAL, welche die eutektische Zusammensetzung wie von der CALPHAD-Datenbank vorhergesagt beschreibt und EXP, um die bei Raumtemperatur in Schliffbildern zu findende Mikrostruktur zu beschreiben.

in [69] untersucht. Abschließend folgt die Vorstellung eines Mechanismus zur Vorhersage der Mikrostrukturen basierend auf Zweipunktkorrelationen, der in [271] publiziert ist.

8.1. Hochtemperaturmuster CAL

In der CALPHAD-Datenbank von Witusiewicz et al. [30, 31] werden die sich entwickelnden Gleichgewichtskonzentrationen und Phasenanteile in der Nähe des ternären eutektischen Punktes des Systems Al-Ag-Cu beschrieben. Um diesen Erstarrungsprozess in den Simulationen abzubilden, wird im Datensatz CAL ein Abschrecken der Proben direkt nach der Erstarrung modelliert. Ein derartiger Prozessweg mit Experimenten ist in [254] publiziert. Durch das Abschrecken wird die Festphasendiffusion und damit die Löslichkeitsänderungen unterdrückt, die zu Veränderungen der Mikrostruktur und der Phasenanteile führen.

Die Simulationsparameter des Datensatzes CAL sind in der Tabelle 8.1 dargestellt. Um die numerische Stabilität zu erhöhen und damit eine höhere Zeitschrittweite zu ermöglichen, sind die Steigungen der Gibbs-Energien flacher als die gefitteten Paraboloide modelliert.

Das Ergebnis einer Simulation mit dem Datensatz CAL und einer Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen ist in Abb. 8.3 dargestellt. In den Ebenen parallel zur Erstarrungsfront bilden sich verschiedene Bereiche der intermetallischen Phasen Ag_2Al und Al_2Cu , die inselartig in die kontinuierliche Al-Matrix eingebettet sind, aus. Diese Art von Struktur ist beispielhaft in dem Schnittbild in Abb. 8.3(a) abgebildet. Die Art der auftretenden Muster wird auf Basis experimenteller Schliffbilder als Tatzen- und Kettenstrukturen klassifiziert [21]. Einzelne Ag_2Al -Fasern sind ganz oder teilweise von Al_2Cu umschlossen, anstatt von der Matrixphase Al. Dieses Verhalten wird ebenfalls bei experimentellen Schliffbildern des Systems Al-Ag-Cu beobachtet.

Tabelle 8.1.: Zusammenfassung der verwendeten Simulationsparameter des Datensatzes CAL, der auch in [38] und [70] genutzt wird.

Parameter	Simulationswert	Physikalischer Wert
<i>Numerische Parameter</i>		
dx	1.0	$3.89 \cdot 10^{-7} m$
dt	3.2	$3.2 \cdot 10^{-3} s$
τ	Phase $\alpha \quad \beta \quad \gamma \quad liq$ $\alpha \quad - \quad 1.68 \quad 1.18 \quad 1.26$ $\beta \quad 1.68 \quad - \quad 0.29 \quad 0.58$ $\gamma \quad 1.18 \quad 0.29 \quad - \quad 1.06$ $liq \quad 1.26 \quad 0.58 \quad 1.06 \quad -$	basierend auf [311]
ϵ	4.0	$1.56 \cdot 10^{-6} m$
$\gamma_{\alpha\beta\gamma}$	6.5	$2.6 J/m^2$
<i>Physikalische Parameter</i>		
γ	Phase $Al \quad Ag_2Al \quad Al_2Cu \quad liq$ $Al \quad - \quad 0.5 \quad 0.4 \quad 0.3$ $Ag_2Al \quad 0.5 \quad - \quad 0.4 \quad 0.4$ $Al_2Cu \quad 0.4 \quad 0.4 \quad - \quad 0.4$ $liq \quad 0.3 \quad 0.4 \quad 0.4 \quad -$	Skalierungsfaktor für physik. Werte: $0.2 J/m^2$, basierend auf [253, 353–355]
D	5.0	$7.5 \cdot 10^{-10} \frac{m^2}{s}$
c_{liq}	0.18, 0.69, 0.13 (Ag, Al, Cu)	0.18, 0.69, 0.13 Mol-% (Ag, Al, Cu)
Phasenfraktionen	0.54, 0.3, 0.16	0.54, 0.3, 0.16
$\Xi_{Al}, \xi_{Al}, X_{Al}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.25 \\ -3.486 \end{bmatrix}, 1.561866$	basierend auf [30, 31]
$\Xi_{Ag_2Al}, \xi_{Ag_2Al}, X_{Ag_2Al}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -3.104 \\ -2.710 \end{bmatrix}, 1.427846$	basierend auf [30, 31]
$\Xi_{Al_2Cu}, \xi_{Al_2Cu}, X_{Al_2Cu}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -1.395 \\ -2.709 \end{bmatrix}, 0.9176$	basierend auf [30, 31]
$\Xi_{liq}, \xi_{liq}, X_{liq}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.140 \\ -3.140 \end{bmatrix}, 3.9532 - 2.6T$	basierend auf [30, 31]
<i>Prozessparameter</i>		
T an T_{eut}	1.0	773.6 K
v von ∇T	$2.1 \cdot 10^{-3}$ Zellen pro Zeitschritt	$0.25 \mu m/s$
∇T	10^{-4}	$200 K/mm$

Trotz der über der Zeit konstanten Phasenfraktionen und der Wachstumsgeschwindigkeit, treten weiterhin Umordnungsprozesse in der Mikrostruktur auf, was u.a. im Überwachsen und Aufsplitten von Fasern resultiert. Dieses Verhalten wird beispielsweise in den freigestellten Fasern aus Ag_2Al in Abb. 8.3(c) und Al_2Cu in Abb. 8.3(d) sichtbar.

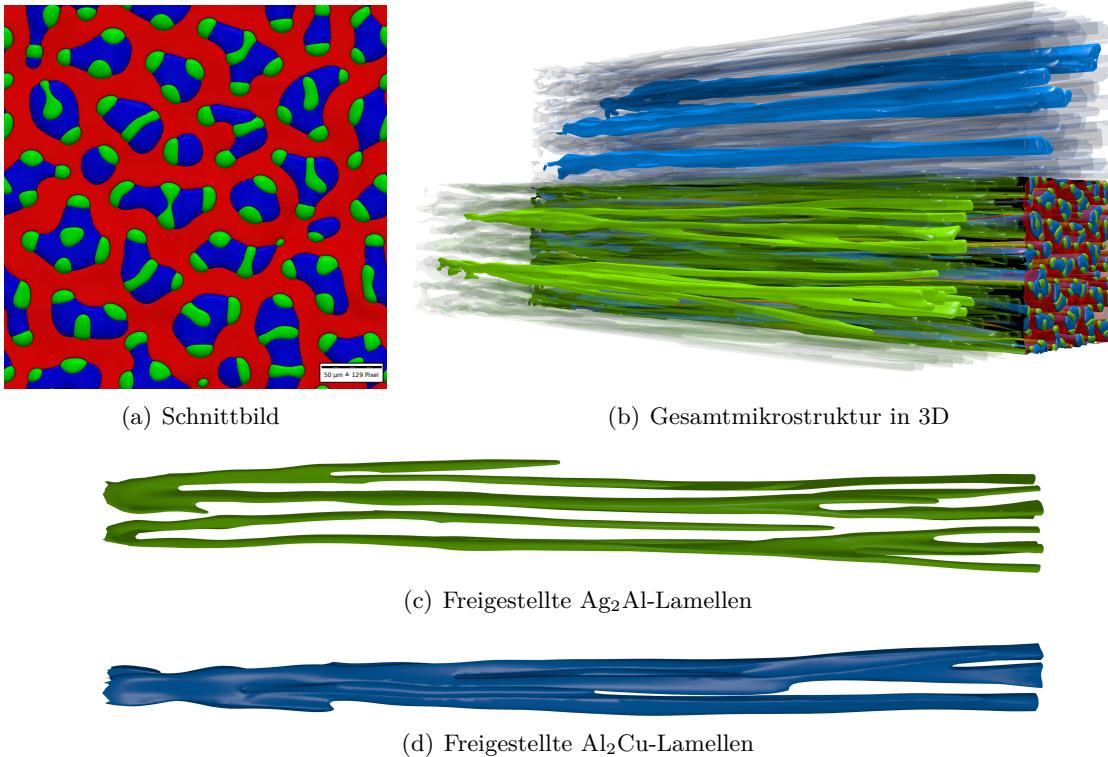


Abbildung 8.3.: Simulationsergebnis des Parametersatzes **CAL** einer 800×800 Voxel-Zellen Simulation. (a) zeigt ein Schnittbild parallel zur Erstarrungsfront am Ende der Simulation und (b) stellt die Gesamtstrukturen in 3D dar. Die intermetallischen Phasen Al_2Cu und Ag_2Al sind vor und über der Gesamtstrukturen freigestellt. In (c) und (d) sind einzelne Fasern der beiden intermetallischen Phasen freigestellt, um das Aufsplitten der Fasern während des Wachstums zu zeigen. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [38].

Die Simulationen mit dem Datensatz **CAL** erlauben eine Vorhersage der sich direkt nach der Erstarrung ohne den Einfluss der Löslichkeitsänderungen entwickelnden Mikrostruktur. Die entstehende Mikrostruktur nach den Löslichkeitsänderungen wird im Folgenden mit dem Parametersatz **EXP** beschrieben.

8.2. Niedrigtemperaturmuster EXP

Der Datensatz **EXP** wurde modelliert, um die Mikrostruktur in den experimentellen Schliffbildern bei Raumtemperatur abzubilden, d.h. nach den Löslichkeitsänderungen. Da aufgrund der unterschiedlichen Zeitskalen der Festphasendiffusion und der Diffusion in der Schmelze [352]

die gleichzeitige Simulation der Erstarrung und der Löslichkeitsänderungen rechenzeittechnisch extrem aufwendig wäre, und zusätzlich, wie in Abschnitt 6.4 gezeigt, großskalige Simulationen notwendig sind, wurde dieser Weg gewählt. Bei der Verwendung der Niedrigtemperaturmuster-Phasenfraktionen mit den in der Literatur bereitgestellten Konzentrationen in den Festphasen und unter Vernachlässigung des Löslichkeitsänderungen, entsteht ein neuer eutektischer Punkt, E_{exp} , der in der Liquidusprojektion in Abb. 8.2(b) dargestellt ist. Die Phasenfraktionen entsprechen den gemittelten Werten aus verschiedenen experimentellen Quellen [14–17, 246] und die Konzentration der Schmelze c_{liquid} wird dementsprechend berechnet. Die Simulationsparameter des Datensatzes EXP sind in der Tabelle 8.2 dargestellt.

In Abb. 8.4 ist das Ergebnis einer Simulation mit dem Datensatz EXP und einer Gesamtgebietsgröße von $800 \times 800 \times 4256$ Voxel-Zellen abgebildet. Wie in dem Schnittbild in Abb. 8.4(a) parallel zur Erstarrungsfront dargestellt, bilden sich Kettenmuster aus. Dabei sind die Kettenglieder der beiden intermetallischen Phasen Al_2Cu und Ag_2Al , eingebettet in eine Al-Matrix. Weiterhin bilden sich einzelne Fasern, die zwischen der Matrix und Lamellen auftreten. Diese Art von Strukturen wird ebenfalls experimentell beobachtet und als Tatzenstruktur [21] bezeichnet. Im Vergleich mit der Mikrostruktur des Datensatzes CAL sind die Ketten länger und stärker verzweigt.

Die Gesamtmikrostruktur in 3D ist in Abb. 8.4(b) zu sehen. Über und vor der Gesamtmi-krostruktur sind die beiden intermetallischen Phasen freigestellt, um die Mikrostrukturentwick-lung von der initialen Voronoi-Verteilung der Keime zur ausgebildeten Mikrostruktur zu zeigen. Einzelne Fasern bzw. Bündel von Fasern der in Abb. 8.4(b) hervorgehobenen intermetallischen Phasen Ag_2Al und Al_2Cu sind in Abb. 8.4(c) und Abb. 8.4(d) freigestellt. Während des Wachstumsprozesses kann das Aufteilen, ein Überwachsen oder ein Zusammenwachsen der Fasern beobachtet werden, was zur Bildung der finalen Mikrostruktur führt. Weiterhin wird durch die freigestellten Strukturen das Auftreten eines weitestgehend stationären Wachstums am Ende der Simulation deutlich, im Gegensatz zu den Ergebnissen des Datensatzes CAL in Abb. 8.3.

8.2.1. Qualitativer Vergleich von Experimenten und dem Datensatz EXP

Im Folgenden werden Simulationsergebnisse des Datensatzes EXP mit einem experimentellen Schliffbild des gerichtet erstarrten Systems Al-Ag-Cu parallel zur Erstarrungsfront qualitativ verglichen.

Ein Schliffbild des Systems Al-Ag-Cu von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Köln, Deutschland ist in Abb. 8.5 dargestellt. In der Mi-krostruktur bildet sich eine Kettenstruktur der beiden intermetallischen Phasen Ag_2Al und Al_2Cu , eingebettet in eine Al-Matrix, aus. Verschiedene Arten von Mikrostrukturmerkmalen sind in Abb. 8.5 (a)-(f) hervorgehoben. Die Merkmale in Abb. 8.5 (a),(d) und (f) zeigen Kettenglieder der Phase Ag_2Al mit konvexer und konkaver Form. Eine Unregelmäßigkeit in der Kettenstruktur mit einer angedockten Faser ist in Abb. 8.5 (d) hervorgehoben. Eine Verzweigung der Ketten ist in Abb. 8.5 (b) dargestellt, eine Ringstruktur in Abb. 8.5 (c) und ein kurzes Kettenfragment in Abb. 8.5 (e).

In Abb. 8.6 ist die Erstarrungsfront einer Simulation mit einer Gesamtgebietsgröße von $2420 \times 2420 \times 1474$ Voxel-Zellen am Ende der Simulation dargestellt. Die Simulation lief ca. 7 Stunden

Tabelle 8.2.: Zusammenfassung der verwendeten Simulationsparameter des Datensatzes EXP, der auch in [38, 70] und [69] genutzt wird.

Parameter	Simulationswert	Physikalischer Wert
<i>Numerische Parameter</i>		
dx	1.0	$3.89 \cdot 10^{-7} m$
dt	3.2	$3.2 \cdot 10^{-3} s$
τ	Phase α β γ liq α $\begin{bmatrix} - & 1.68 & 1.18 & 1.26 \\ 1.68 & - & 0.29 & 0.58 \\ 1.18 & 0.29 & - & 1.06 \\ 1.26 & 0.58 & 1.06 & - \end{bmatrix}$ β γ liq	basierend auf [311]
ϵ	4.0	$1.56 \cdot 10^{-6} m$
$\gamma_{\alpha\beta\gamma}$	6.5	$2.6 J/m^2$
<i>Physikalische Parameter</i>		
γ	Phase Al Ag_2Al Al_2Cu liq Al $\begin{bmatrix} - & 0.5 & 0.4 & 0.3 \\ 0.5 & - & 0.4 & 0.4 \\ 0.4 & 0.4 & - & 0.4 \\ 0.3 & 0.4 & 0.4 & - \end{bmatrix}$ Ag_2Al Al_2Cu liq	Skalierungsfaktor für physik. Werte: $0.2 J/m^2$, basierend auf [253, 353–355]
D	5.0	$7.5 \cdot 10^{-10} m^2$
c_{liq}	0.237, 0.622, 0.141 (Ag, Al, Cu)	0.237, 0.622 , 0.141 Mol-% (Ag, Al, Cu)
Phasenfraktionen	0.355, 0.309, 0.334	0.334, 0.309, 0.355
$\Xi_{Al}, \xi_{Al}, X_{Al}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.25 \\ -3.486 \end{bmatrix}, 1.561866$	basierend auf [30, 31]
$\Xi_{Ag_2Al}, \xi_{Ag_2Al}, X_{Ag_2Al}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -3.104 \\ -2.710 \end{bmatrix}, 1.427846$	basierend auf [30, 31]
$\Xi_{Al_2Cu}, \xi_{Al_2Cu}, X_{Al_2Cu}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -1.395 \\ -2.709 \end{bmatrix}, 0.9176$	basierend auf [30, 31]
$\Xi_{liq}, \xi_{liq}, X_{liq}$	$\begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} -2.220 \\ -2.980 \end{bmatrix}, 3.8655 - 2.6T$	basierend auf [30, 31]
<i>Prozessparameter</i>		
T an T_{eut}	1.0	773.6 K
v von ∇T	$2.1 \cdot 10^{-3}$ Zellen pro Zeitschritt	$0.25 \mu m/s$
∇T	10^{-4}	$200 K/mm$

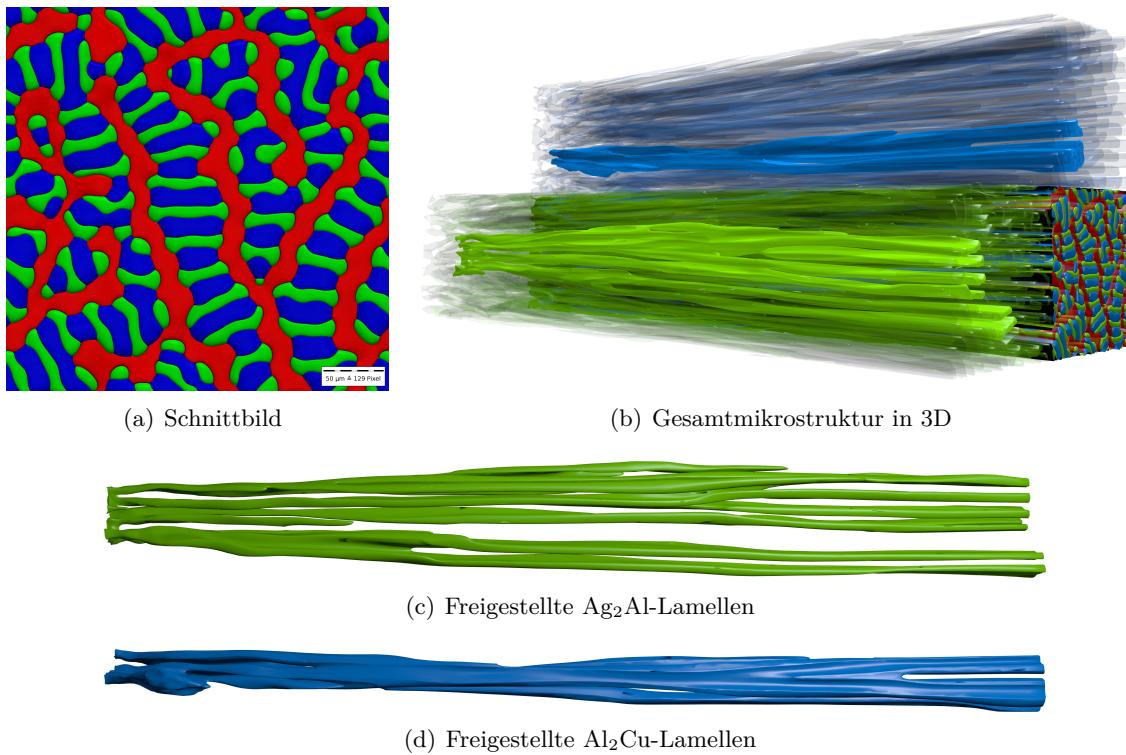


Abbildung 8.4.: Ergebnis einer Simulation des Datensatzes EXP mit einer Gesamtgebietsgröße von $800 \times 800 \times 4256$ Voxel-Zellen. (a) zeigt ein Schnittbild parallel zur Erstarrungsfront am Ende der Simulation und (b) stellt die Gesamtmikrostruktur und die freigestellten intermetallischen Phasen in 3D dar. Die in (b) hervorgehobenen Fasern sind in (c) und (d) freigestellt, um das Aufteilen, Überwachsen oder Zusammenwachsen der Fasern während des Wachstums zu zeigen. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [38].

mit 84700 CPUs auf dem Hermit-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart (HLRS). Die Festphasen ordnen sich als Kettenstrukturen der beiden intermetallischen Phasen Ag_2Al und Al_2Cu , eingebettet in eine Al-Matrix, an. Verglichen mit dem experimentellen Schliffbild in Abb. 8.5 bilden sich ähnliche Mikrostrukturmerkmale aus. Die sechs hervorgehobenen Merkmale finden sich ebenfalls in der Simulation und sind in Abb. 8.6(a)-(f) dargestellt. Trotz der guten visuellen Übereinstimmung treten Unterschiede zwischen der Simulation und dem Experiment auf. Die relative Anzahl der getrennten Ketten, die Phase am Ende der Ketten und die Vielfalt in der Breite der Ketten senkrecht zur Kettenrichtung ist unterschiedlich. Der Vergleich der Mikrostrukturen bezüglich der Gemeinsamkeiten und Unterschieden ist im Detail in [38] ausgeführt.

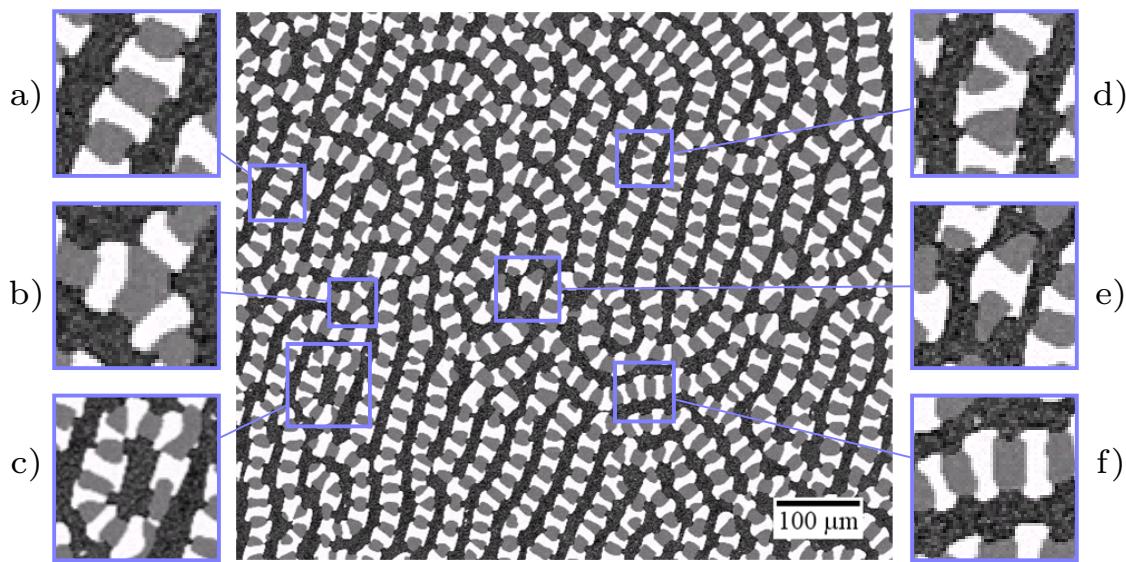


Abbildung 8.5.: Experimentelles Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront von gerichtet erstarrtem, ternären eutektischen Al-Ag-Cu mit Kettenstrukturen. Einige Mikrostrukturmerkmale sind hervorgehoben. Die Al-Phase ist in schwarz, Al_2Cu in grau und Ag_2Al in weiß dargestellt. Die Probe ist mit einer Geschwindigkeit von $0.08 \mu\text{m}/\text{s}$ mit einem Gradienten von $2.2 \text{ K}/\text{mm}$ erstarrt. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [38].

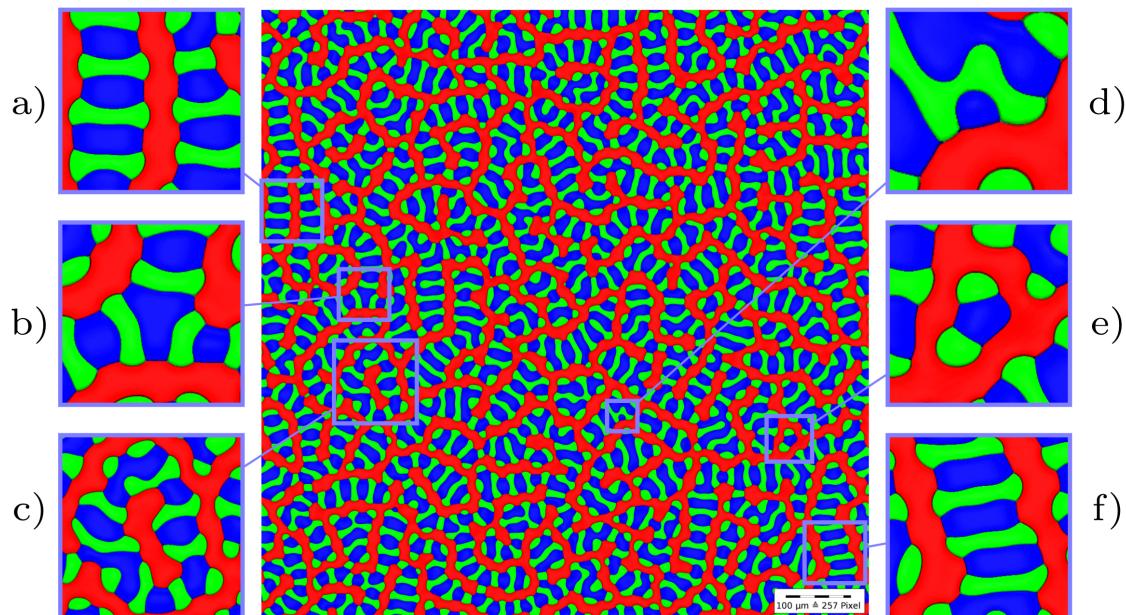


Abbildung 8.6.: Simulationsergebnis des Datensatzes EXP mit einer Basis-Größe von 2420×2420 Voxel-Zellen. Dargestellt ist die Erstarrungsfront am Ende der Simulation. Einige Mikrostrukturmerkmale sind ähnlich wie in Abb. 8.5 hervorgehoben. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [38].

8.2.2. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Beim Vergleich der Ergebnisse der Datensätze CAL und EXP zeigen sich deutliche Unterschiede in der entstehenden Mikrostruktur in Schnitten senkrecht zur Wachstumsrichtung. Dies veranschaulicht den Einfluss der Löslichkeitsänderungen durch die Festphasendiffusion. Während in EXP lange Kettenstrukturen entstehen, sind diese in CAL kürzer und inselartig in der umgebenden Al-Matrix verteilt. Es ergibt sich eine gute qualitative Übereinstimmung zwischen EXP und experimentellen Ergebnissen aus Schleifbildern bei Raumtemperatur. In beiden Schnittbildern können ähnliche Strukturen und Merkmale beobachtet werden. Ein quantitativer Vergleich wird in Abschnitt 8.4 durchgeführt. Obwohl in allen Simulationen die Phasenfraktionen während des Wachstums zu konstanten Werten konvergiert sind, haben sich nur in den Simulationen des Parametersatzes EXP annähernd stationäre Muster eingestellt. Die Ausbildung stationärer Mikrostrukturen wird im folgenden Abschnitt weiter untersucht.

8.3. Bestimmung der Stationarität der Mikrostrukturentwicklung und der statistischen Volumenelemente

Für die Bestimmung der Anzahl notwendiger Zeitschritte in den Simulationen zum Erreichen einer ausgebildeten Mikrostruktur und der erforderlichen Basis-Größe für das System Al-Ag-Cu, werden Zweipunktkorrelationen und eine Hauptkomponentenanalyse, wie in Abschnitt 5.4 vorgestellt, verwendet. Die Ergebnisse dieses Abschnittes sind ebenfalls teilweise in [70] publiziert. Der Vergleich wurde im Rahmen einer Kooperation mit dem Lehrstuhl von Prof. Dr. Surya R. Kalidindi vom Georgia Institute of Technology, Atlanta, USA durchgeführt. Für die Analyse von Schnittbildern parallel zur Erstarrungsfront des Systems Al-Ag-Cu werden die Autokorrelation der Phase Al und ihre Kreuzkorrelation mit Al_2Cu angewandt, um einen linear unabhängigen Satz von Zweipunktkorrelationen (ZPK) zu erhalten. Diese Korrelationen wurden gewählt, da die Phase Al die höchste Varianz aufweist und die beiden Phasen Al und Al_2Cu die höchsten Phasenanteile haben. Für die Untersuchung werden Zweipunktkorrelationen über die Zeit in Simulationen mit verschiedenen Basis-Größen von 100×100 bis zu 1200×1200 Voxel-Zellen beobachtet. Die Größe pro Voxel in den Simulationen bleibt dabei konstant und dementsprechend wird die physikalische Gebietsgröße erhöht.

8.3.1. Datensatz CAL

Für einen quantitativen Vergleich der Ergebnisse verschiedener Basis-Größen sind Schnittbilder des Systems CAL senkrecht zur Erstarrungsrichtung in der Nähe der jeweiligen Wachstumsfront zu unterschiedlichen Zeitpunkten zusammen mit den korrespondierenden Al-Al-Autokorrelationen in Abb. 8.7 gezeigt. Zur Vereinfachung der Darstellung sind alle Schnittbilder auf die gleiche Größe skaliert, aber die Bilder entsprechen verschiedenen räumlichen Auflösungen, wegen der unterschiedlichen Anzahl an Zellen in der Basis-Größe. Die ZPK haben aufgrund des Zuschneidens der Abstandsvektoren auf maximal 50 Zellen in jede der beiden Raumdimensionen die gleiche räumliche Auflösung.

Die Mikrostrukturen in der Simulation mit 100×100 Voxel-Zellen unterscheiden sich in der Form der Fasern verglichen mit den anderen Basis-Größen, da sich dort eine durchgängige

Kettenstruktur ausbildet. In der Simulation mit 200×200 Zellen Basis-Größe entwickeln sich zunächst verschiedene Tatzenstrukturen, die aus einzelnen Ag_2Al -Fasern um eine Al_2Cu -Faser bestehen und in die Al-Matrix eingebettet sind. Im Laufe der Simulation bildet sich eine Kombination von Tatzen- und Kettenstrukturen aus. Diese treten auch in den Berechnungen mit 400×400 und 800×800 Zellen Basis-Größe auf.

Die in Abb. 8.7 gezeigten Zweipunktkorrelationen spiegeln ebenfalls den Einfluss der Basis-Größe auf die Simulationsergebnisse wider. Bei der Analyse der Mikrostrukturen und ihrer korrespondierenden Zweipunktkorrelationen zeigt sich, dass die Längenskalen der Muster in den Mikrostrukturen mit den zugeschnittenen ZPK korrekt abgebildet werden, da die Werte zum Rand der ZPK hin abfallen. Andere häufig genutzte Messmethoden für die Quantifizierung von Mikrostrukturen, wie die relative Grenzlinienlänge sowie die durchschnittliche Form und Größe der Fasern lassen sich aus den ZPK zurückrechnen [333, 334, 336, 339]. In den Simulationen mit größeren Basis-Größen bildet sich eine isotropere Verteilung der Mikrostrukturen. Dies ist einerseits optisch in den Schnittbildern erkennbar, andererseits kann diese Beobachtung mit der Winkelabhängigkeit der Zweipunktkorrelationen quantifiziert werden. Die periodischen Randbedingungen in den Simulationen werden in den Zweipunktkorrelationen korrekt abgebildet. Dies zeigt sich z. B. für die Simulation mit einer Basis-Größe von 100×100 Voxel-Zellen. Obwohl die Mikrostruktur bei den Zeitschritten von 500 000 bis 2 000 000 unterschiedlich aussehen, sind sie maßgeblich im periodischen Gebiet verschoben, was in ähnlichen Zweipunktkorrelationen resultiert. Die ZPK liefern eine Möglichkeit, quantitative Aussagen darüber zu treffen, ob sich bereits ein stabiles Wachstum der Mikrostruktur eingestellt hat, da eine Messung der Unterschiede zwischen den Zweipunktkorrelationen möglich ist.

Um statistische Aussagen zu treffen, ist die Basis-Größe in den Simulationen ausreichend groß, wenn die Zweipunktkorrelationen, bei einer weiteren Vergrößerung der Basis-Größe, keine signifikanten Änderungen mehr aufweisen [70]. Für den Datensatz CAL wird die Unabhängigkeit von der initialen Mikrostruktur und den Randbedingungen ab einer Basis-Größe von ungefähr 800×800 Voxel-Zellen erreicht.

Zur weiteren Untersuchung des Einflusses der Basis-Größe und der notwendigen Anzahl an Zeitschritten in den Simulationen für das Erreichen einer ausgebildeten Mikrostruktur, wird eine Hauptkomponentenanalyse basierend auf den Zweipunktkorrelationen durchgeführt. Diese Analyse erlaubt es, die Anzahl der betrachteten Statistikwerte deutlich zu reduzieren und somit einen Vergleich verschiedener Mikrostrukturen zu vereinfachen.

In Abb. 8.8 sind die ersten drei PC-Werte der Simulationen über der Wachstumshöhe aufgetragen. Jede der Linien zeigt jeweils die Entwicklung der Mikrostruktur einer Simulation über der Wachstumshöhe und die Farben der Kurven korrespondieren mit den Schnittbildern in Abb. 8.7. Die Kurven oszillieren zu Beginn der Simulationen. Diese Oszillationen klingen mit der Zeit ab, während sich aus der initialen Mikrostruktur die finale ausbildet. Dabei sind für größere Basis-Größen diese Oszillationen weniger stark ausgeprägt. Für die Basis-Größen 400×400 und 800×800 Voxel-Zellen konvergieren die ersten drei PC-Werte zum selben Punkt im PC-Raum. Der PC3-Wert für die 400×400 Simulationen konvergiert dabei später als der für 800×800 . Obwohl auch die PC-Werte der Simulation mit einer Basis-Größe von 100×100 Voxel-Zellen konvergieren, unterscheidet sich der konvergierte Wert von dem für größere Basis-Größen.

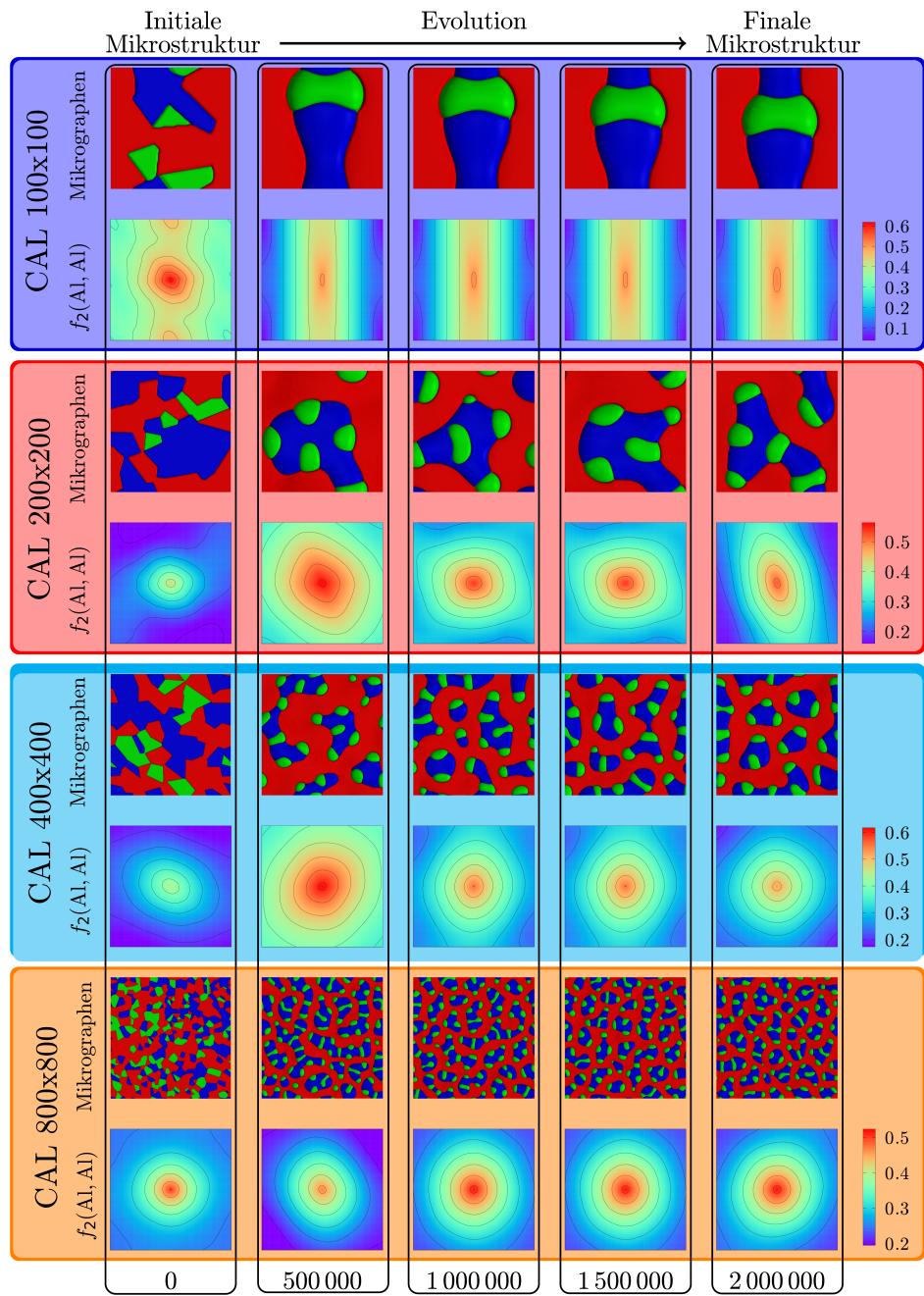


Abbildung 8.7.: Ergebnisse des Datensatzes CAL mit verschiedenen Basis-Größen (100×100 , 200×200 , 400×400 und 800×800) über der Wachstumshöhe. Die Schnittbilder senkrecht zur Wachstumsrichtung zeigen die Mikrostruktur nach jeweils 500 000 Zeitschritten in der Nähe der Erstarrungsfront. Weiterhin sind die korrespondierenden Al-Al-Autokorrelationen, zugeschnitten mit Vektoren von 50 Zellen in die x - und y -Richtung, dargestellt. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [70].

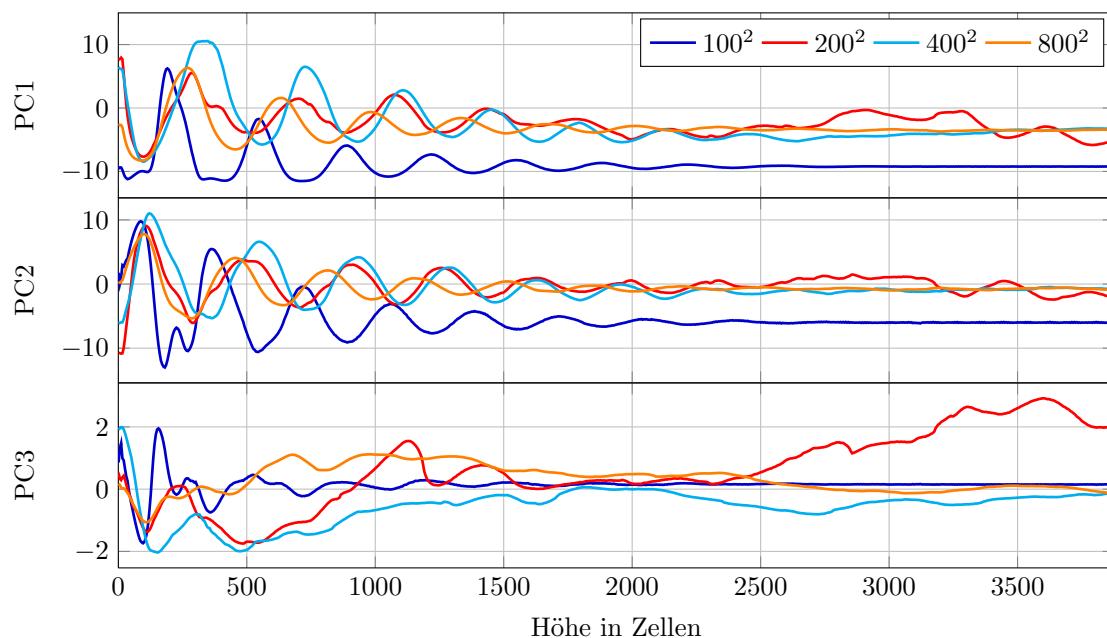


Abbildung 8.8.: Diagramm der ersten drei PC-Werte des Datensatzes **CAL** über der Wachstumshöhe für die Basis-Größen 100×100 , 200×200 , 400×400 und 800×800 . Diese Abbildung basiert auf einem Diagramm in [70].

Ähnlich wie die Zweipunktkorrelationen zeigen die Ergebnisse, dass für den Datensatz **CAL** eine Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen notwendig ist, um eine Unabhängigkeit von den Randbedingungen und der initialen Mikrostruktur zu erreichen. Weiterhin sind die Verläufe der ersten drei PC-Werte in Abb. 8.8 ab einer Wachstumshöhe von ca. 2000 Zellen konvergiert, was ungefähr 1 000 000 Zeitschritten entspricht. Dies impliziert, dass sich ab dieser Wachstumshöhe keine statistischen Änderungen der Mikrostruktur für den Datensatz **CAL** mehr ergeben und die Mikrostruktur somit ausgebildet ist.

8.3.2. Datensatz **EXP**

Im Folgenden werden für den Datensatz **EXP** die Anzahl der notwendigen Zeitschritte in den Simulationen zum Erreichen einer ausgebildeten Mikrostruktur und die dazu notwendige Gebietsgröße mit Zweipunktkorrelationen und einer Hauptkomponentenanalyse bestimmt. Dazu wird das gleiche Vorgehen wie für **CAL** genutzt.

In Abb. 8.9 sind Schnittbilder parallel zur Erstarrungsfront von **EXP** mit Basis-Größen von 100×100 bis 1200×1200 Voxel-Zellen sowie ihre Al-Al-Autokorrelation für verschiedene Zeitschritte zu sehen. Aufgrund der kleinen Gebietsgrößen bildet sich bei 100×100 zwar eine weitestgehend isotrope ZPK aus, deren Werte variieren allerdings, aufgrund einer Oszillation in den Phasenanteilen über die Zeit. Für 200×200 und 400×400 haben die sich ausbildenden Kettenstrukturen überwiegend eine Ausrichtung, was sich auch in den ZPK für die verschiedenen Zeitschritte widerspiegelt. Für Basis-Größen von 800×800 und 1200×1200 ist die Ausrichtung in den ZPK weniger stark ausgeprägt. Dies resultiert daraus, dass die Ketten

in den Schnittbildern zunehmend zufällig ausgerichtet sind und dementsprechend zu einer größeren Isotropie der Gesamtstrukturen führen.

In Abb. 8.10 ist die Projektion der in Abb. 8.9 vorgestellten Simulationen des Datensatzes EXP in den Raum der ersten drei PC-Werte dargestellt. Die Phasenbreiten bzw. Phasenanteile in der Simulation mit der Basis-Größe 100×100 Voxel-Zellen, bei der sich eine aus Vier- und Achtecken bestehende Mikrostruktur ausbildet, oszillieren um die vom Phasendiagramm vorhergesagten Werte, was auch in den PC1-Werten über der Wachstumshöhe reflektiert wird. Die Amplitude der Oszillation ist in den PC2- und PC3-Werten weniger stark ausgeprägt, tritt dort aber ebenfalls auf. Ab einer Basis-Größe von 200×200 entwickeln sich Kettenstrukturen, bestehend aus Al_2Cu - und Ag_2Al -Fasern. Da diese Ketten sich über größere Bereiche als in CAL ausbreiten und stärker vernetzt sind, ist die Evolution der Mikrostruktur weniger stark ausgeprägt und ein stabiles Wachstum stellt sich früher ein. Ab einer Basis-Größe von 400×400 ist die Mikrostruktur nach ca. 1500 Zellen Wachstum ausgebildet, was ungefähr 700 000 Zeitschritten entspricht. Dieses Verhalten tritt ebenfalls für 800×800 und 1200×1200 auf. Abgesehen von den Simulationen mit den Basis-Größen 100×100 und 200×200 Voxel-Zellen konvergieren die PC1- und PC2-Werte aller Simulationen gegen ähnliche Werte. Für die 200×200 und 400×400 Simulationen weichen die konvergierten Werte für PC3 von denen der anderen Simulationen ab. Daraus folgend ist für den Datensatz EXP eine Unabhängigkeit von der initialen Mikrostruktur und den Randbedingungen erst ab einer Basis-Größe von ungefähr 800×800 Voxel-Zellen erreicht.

Bestimmung statistischer Volumenelemente

Nach der Bestimmung der notwendigen Basis-Größe zur Reduktion des Einflusses der initialen Mikrostruktur und der Randbedingungen wird im nächsten Schritt die notwendige Gebietsgröße für statistische Volumenelemente (SVE) bestimmt. Ein Gebiet, welches eine ausreichende Anzahl an Mikrostrukturelementen enthält und groß genug ist, um im Mittel die Eigenschaften des makroskopischen Bauteils abzubilden, wird als repräsentatives Volumenelement (RVE) bezeichnet [356]. Dafür sind im Allgemeinen große Gebiete notwendig, die für Simulationen hohe Rechenkosten verursachen. Anstelle von RVEs können auch SVEs verwendet werden [339, 357–361]. Diese sind im Allgemeinen kleiner als RVEs und deren Eigenschaften werden gemittelt um eine Repräsentanz zu erreichen.

In diesem Abschnitt wird gezeigt, dass sich mit der Hauptkomponentenanalyse basierend auf ZPK von Phasenfeldsimulationen aus mehreren kleinen Gebieten, statistisch gesehen, die gleichen Informationen wie aus einem größeren RVE gewinnen lassen. Dazu werden ZPK mehrerer kleinerer Gebiete mit unterschiedlichen Basis-Größen und unterschiedlicher initialer Mikrostruktur gemittelt. Die initialen Mikrostrukturen unterscheiden sich, da sie aus zufällig gesetzten Voronoi-Verteilungen entstanden sind. Die erste Serie besteht aus neun Simulationen des Datensatzes EXP mit einer Basis-Größe von 400×400 Voxel-Zellen, die zweite Serie aus vier 800×800 Simulationen und die letzte Serie aus zwei 1200×1200 Mikrostrukturen. Da die Simulationen mit den Basis-Größen 100×100 und 200×200 Voxel-Zellen einen starken Einfluss der Randbedingungen aufwiesen und teilweise im PC-Raum nicht konvergieren, werden sie für diese Analyse vernachlässigt. Diese Analyse wurde aufgrund der Rechenkosten nur für den Datensatz EXP durchgeführt, wäre aber genauso für den Datensatz CAL möglich.

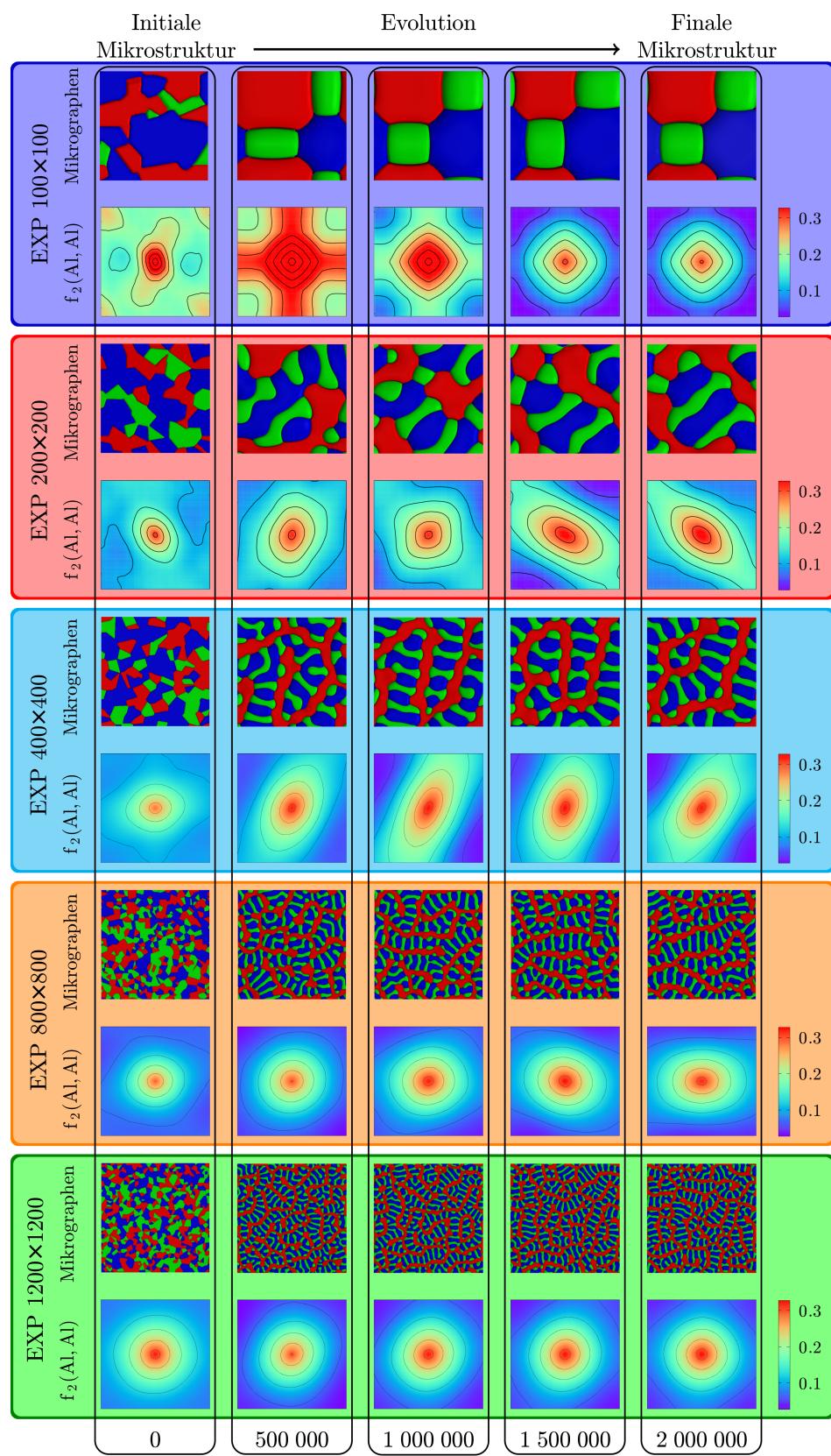


Abbildung 8.9.: Schnittbilder des Datensatzes EXP senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Nähe der Erstarrungsfront für verschiedene Zeitschritte mit einer Basis-Größe von 100×100 bis 1200×1200 Zellen. Weiterhin sind die korrespondierenden Al-Al-Autokorrelationen, zugeschnitten mit Vektoren von 50 Zellen in die x - und y -Richtung, dargestellt.

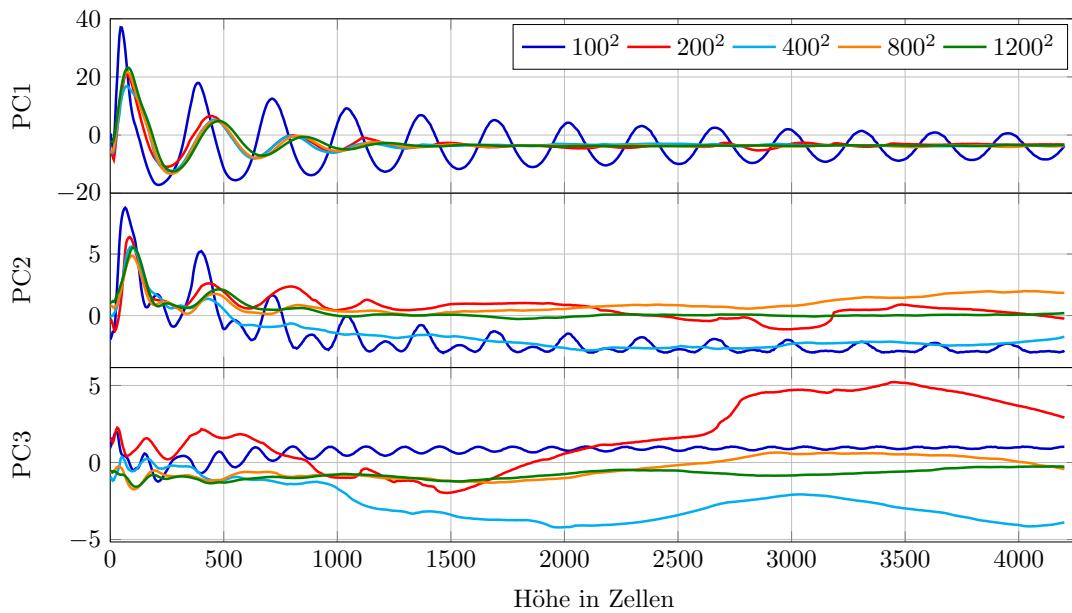


Abbildung 8.10.: Die ersten drei PC-Werte des Datensatzes EXP über der Wachstumshöhe für die Basis-Größen 100×100 , 200×200 , 400×400 , 800×800 und 1200×1200 Voxel-Zellen. Diese Abbildung basiert auf einem Diagramm in [70].

Die Ergebnisse dieser drei Simulationsserien sind in Abb. 8.11 zusammengefasst. Obwohl die einzelnen Simulationen in der Serie mit kleinerer Basis-Größe innerhalb der Serie eine hohe Varianz aufweisen, sind die Mittelwerte der ZPK aller drei Serien ähnlich. Das heißt, es können, statistisch gesehen, aus vielen kleinen Phasenfeldsimulationen die gleichen Informationen wie mit wenigen großen Simulationen erhalten werden, sobald eine minimale Basis-Größe überschritten ist. Dies erlaubt es den Rechenaufwand zu verringern. Alle Simulationen in Abb. 8.11 wurden auf dem SuperMUC-Cluster in München mit einer konstanten Anzahl von Zellen pro CPU durchgeführt.

Die benötigte Simulationszeit und der notwendige RAM erhöht sich von 6.87 Stunden mit 3 600 CPUs und 12.02 GB RAM für 400×400 Zellen Basis-Größe auf 10.20 Stunden mit 14 400 CPUs und 48.07 GB für 800×800 bis auf 20.14 Stunden mit 32 400 CPUs und 108.15 GB RAM für 1200×1200 , wenn Netzwerkkommunikation zwischen den einzelnen Haswell-Recheninseln auftritt. Die daraus resultierende Anzahl der benötigten Rechenstunden (CPUh) ist über der Kantenlänge der Basis-Größe in Abb. 8.12 mit orangen Punkten aufgetragen. Zusätzlich ist der ideale Skalierungsverlauf, bezogen auf die Simulation mit der Basis-Größe 100×100 Voxel-Zellen in blau dargestellt. Aus dem Diagramm wird deutlich, dass eine Simulation mit einer Basis-Größe von 1200×1200 Zellen den gleichen Rechenaufwand wie 26 Simulationen mit einer Basis-Größe von 400×400 Zellen benötigt.

Allerdings ist eine minimale Basis-Größe notwendig, da die Mittelwerte von Serien unterhalb dieser Gebietsgröße nicht zu den Mittelwerten der Serien größerer Basis-Größen konvergieren, selbst wenn eine sehr große Zahl an Mikrostrukturen betrachtet wird. Daher ist für die Berechnung eines RVEs aus SVE eine minimale Gebietsgröße von 400×400 Zellen parallel zur Erstarrungsfront notwendig.

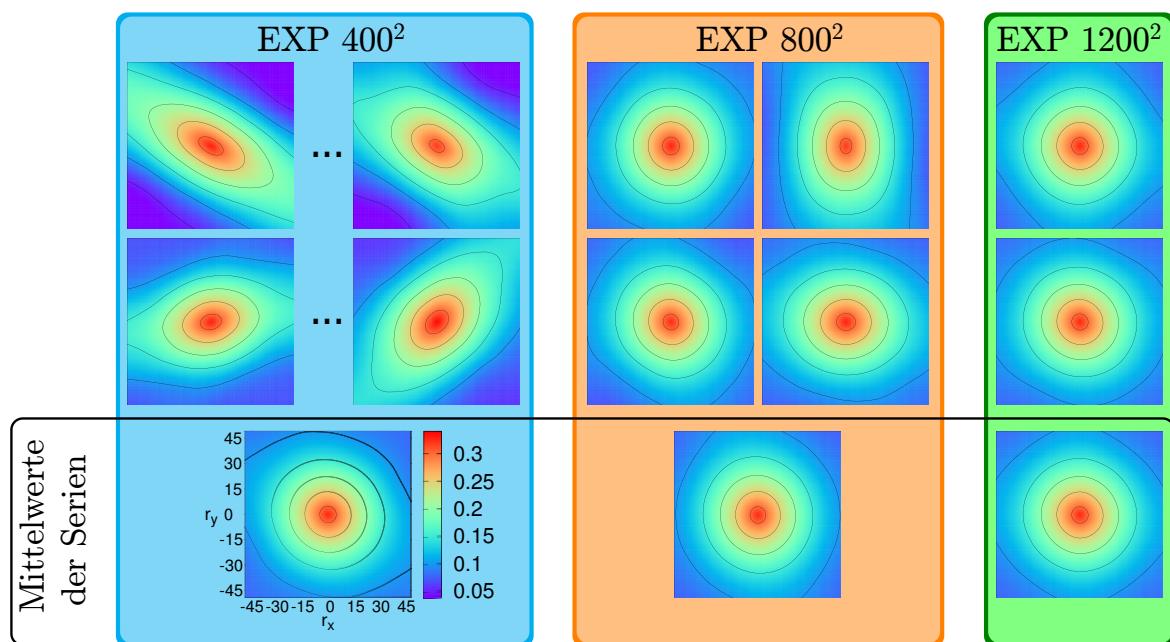


Abbildung 8.11.: Al-Al-Autokorrelationen des Datensatzes EXP mit Basis-Größen von 400×400 , 800×800 und 1200×1200 Zellen senkrecht zur Wachstumsrichtung an der Erstarrungsfront und die Mittelwerte der drei Serien. Alle ZPK haben die gleiche Auflösung und die Skala an den Achsen ist nur für den Mittelwert von 400×400 gezeigt. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [70].

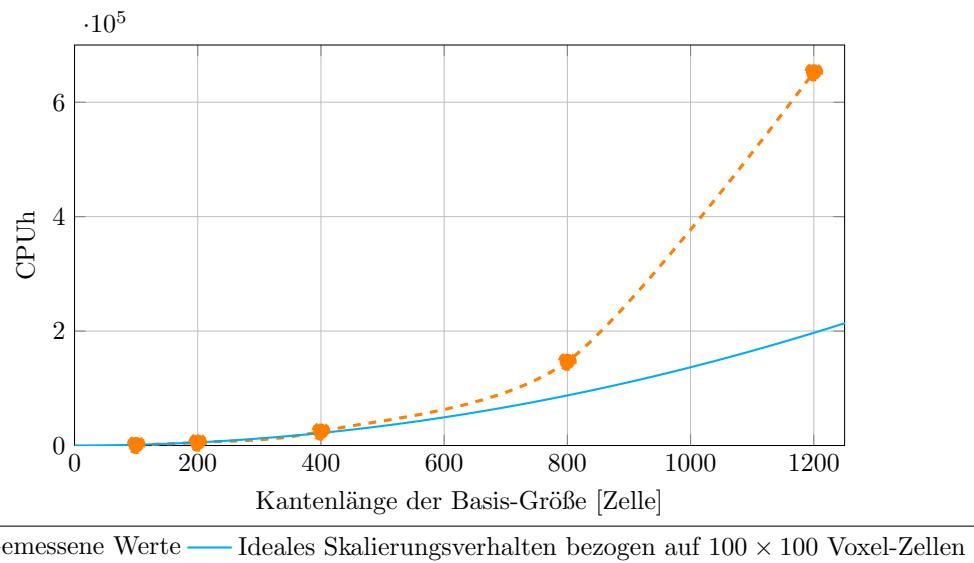


Abbildung 8.12.: Anzahl der benötigten Rechenstunden (CPUh) über der Kantenlänge der Basis-Größe für die in Abb. 8.9 dargestellten Simulationen. Zusätzlich ist der ideale Skalierungsverlauf, bezogen auf die Simulation mit der Basis-Größe 100×100 Voxel-Zellen, dargestellt.

Die Ergebnisse zur Bestimmung von SVEs können, wie in Abb. 8.13 dargestellt, ebenfalls durch die Hauptkomponentenanalyse erreicht werden. Die Mittlung mehrerer kleiner Simulationsergebnisse konvergiert zu den gleichen PC-Werten wie das Ergebnis weniger, aber größerer Simulationen. Um die Varianz zwischen den Simulationen innerhalb einer Serie, sowie den Unterschied zwischen den Mittelwerten der Serien zu quantifizieren, sind die Mittelwerte und die Standardabweichungen der ersten drei PC-Werte in Tabelle 8.3 zusammengefasst. Mit steigender Basis-Größe nimmt die Varianz innerhalb der Serien ab und die Mittelwerte konvergieren zum selben Punkt im PC-Raum, was in Übereinstimmung mit Abb. 8.13 ist.

Tabelle 8.3.: Die Mittelwerte und die Standardabweichungen der ersten drei PC-Werte für die Serien des Datensatzes EXP in der Nähe der Erstarrungsfront.

Basis-Größe	PC1		PC2		PC3	
	Mittelwert	Standardabweichung	Mittelwert	Standardabweichung	Mittelwert	Standardabweichung
400 × 400	-3.56	0.28	-0.10	2.00	-0.6	3.03
800 × 800	-3.63	0.18	0.35	0.92	-0.31	0.23
1200 × 1200	-3.57	0.08	0.03	0.17	-0.29	0.02

8.3.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Abschnitt wurde die Anzahl der notwendigen Zeitschritte zum Erreichen stationären Wachstums und einer ausgebildeten Mikrostruktur für die Datensätze CAL und EXP mit einer Hauptkomponentenanalyse, basierend auf Zweipunktkorrelationen, quantitativ bestimmt. Weiterhin wurde auch die benötigte Basis-Größe für von Randbedingungen unbeeinflusste Simulationen für das System Al-Ag-Cu quantitativ ermittelt. Für beide Datensätze ist eine minimale Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen notwendig. Diese Resultate zeigen die Notwendigkeit von großskaligen Simulationen der Erstarrung ternärer Eutektika, um statistisch aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten. Die Erkenntnisse sind in Übereinstimmung mit den Simulationsresultaten des idealen ternären eutektischen Systems in Kapitel 6. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass sich durch die Mittlung der ZPK aus mehreren kleinen SVEs die gleichen statistischen Erkenntnisse wie aus wenigen großen bestimmen lassen.

Die gewonnenen Erkenntnisse, sowohl über die benötigte Gebietsgröße, als auch über die notwendige Anzahl an Zeitschritten, werden in den kommenden Abschnitten für einen quantitativen Vergleich mit Experimenten, sowie für eine systematische Parametervariation genutzt.

8.4. Quantitativer Vergleich zwischen Simulation und Experiment

Nachdem in Abschnitt 8.2.1 eine gute visuelle Übereinstimmung zwischen experimentellen Schliffbildern und den Ergebnissen des Datensatzes EXP gezeigt wurde, wird im Folgenden ein quantitativer Vergleich zwischen experimentellen Schliffbildern von gerichtet erstarrtem ternär eutektischen Al-Ag-Cu und von Simulationsergebnissen der Systeme CAL und EXP

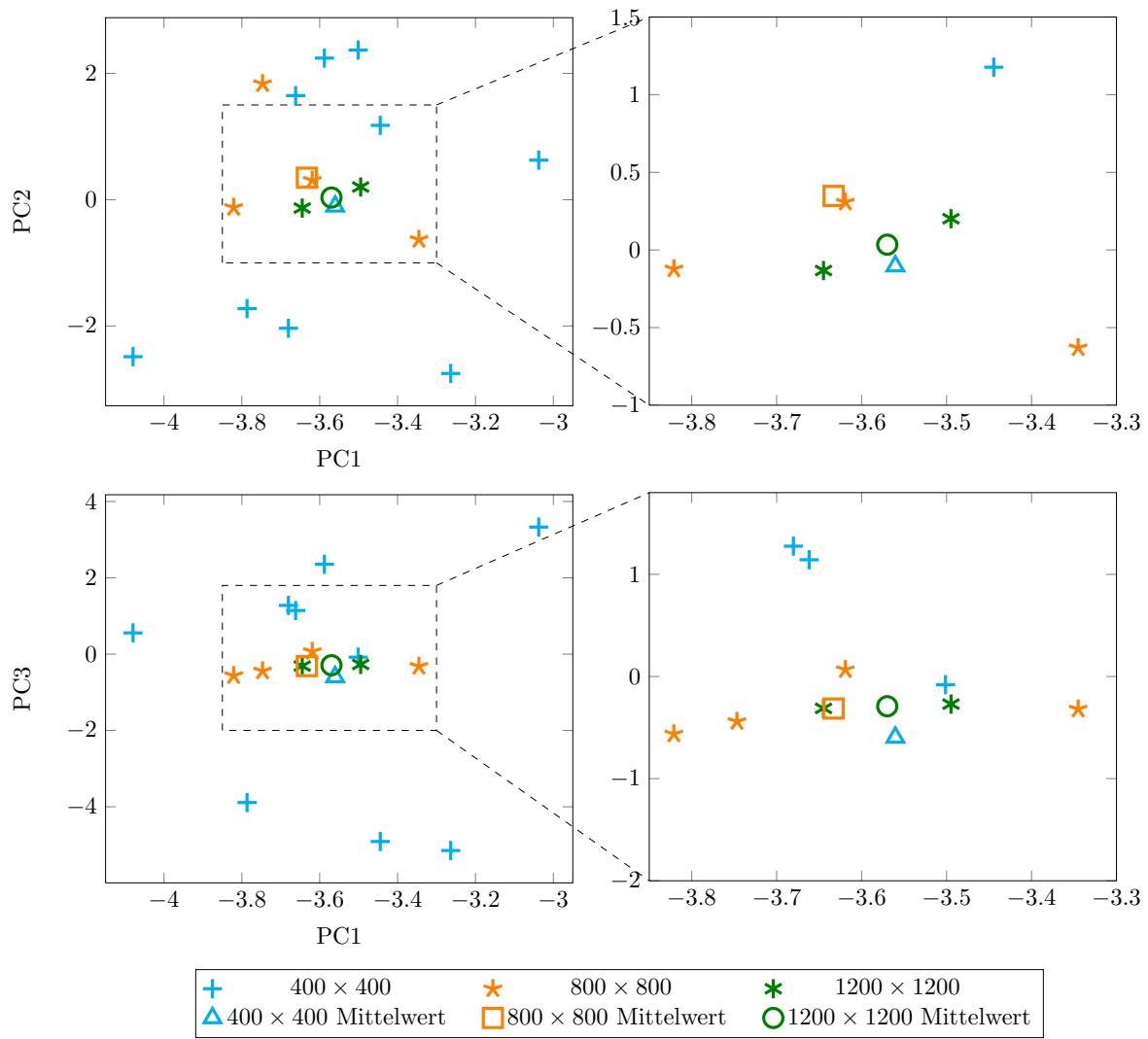


Abbildung 8.13.: Projektionen von Schnittbildern senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Nähe der Erstarrungsfront nach 2 000 000 Zeitschritten in die PC1-PC2- und die PC1-PC3-Ebenen für verschiedene Basis-Größen. Die Abbildungen rechts vergrößern die in der Mitte gelegene Region. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [70].

durchgeführt. Dazu wird zunächst eine Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen auf experimentelle Schliffbilder und auf Simulationen angewandt. Daran anschließend werden Simulationen und Experimente mit Nächste-Nachbarn-Statistiken verglichen.

8.4.1. Hauptkomponentenanalyse

Die experimentellen Schliffbilder, die für den Vergleich in diesem Abschnitt verwendet werden, stammen von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Köln und sind teilweise in [16, 17] publiziert. Die Ergebnisse des folgenden Abschnittes sind

teilweise ebenfalls in [70] veröffentlicht. Der Vergleich wurde im Rahmen einer Kooperation mit dem Lehrstuhl von Prof. Dr. Surya R. Kalidindi vom Georgia Institute of Technology, Atlanta, USA durchgeführt. Zur Analyse wird der in Abschnitt 5.4 beschriebene Algorithmus sowohl auf Schnittbilder von Simulationen senkrecht zur Erstarrungsrichtung als auch auf experimentelle Schliffbilder mit verschiedenen Wachstumsgeschwindigkeiten angewandt. Die resultierenden Projektionen der Schnittbilder in den Raum, der durch die ersten drei PC-Werte aufgespannt wird, sind in Abb. 8.14 abgebildet. Dabei sind die Simulationen der Datensätze EXP durch blaue Punkte und die von CAL durch orange Punkte markiert und die Experimente sind mit grünen Punkten dargestellt. Zusätzlich sind unter dem 3D-Plot die Projektionen in die PC1-PC2- und die PC1-PC3-Ebene, ein experimentelles Schliffbild (1) sowie ausgewählte Schnittbilder nach 2 Millionen Zeitschritten von EXP (2) und CAL (3), die ebenfalls im PC-Raum markiert sind, abgebildet. Die Streuung in den experimentellen Schliffbildern wird durch die Vielzahl der auftretenden Mustern in gerichtet erstarrtem ternär eutektischem Al-Ag-Cu bei unterschiedlichen Prozessbedingungen verursacht.

Für die Simulationen des Datensatzes CAL, der die Musteranordnung oberhalb der Löslichkeitsänderung beschreibt, findet sich keine Übereinstimmung mit den Experimenten in Abb. 8.14. Diese Abweichungen resultieren aus den Unterschieden in den Phasenfraktionen und den auftretenden Mustern. Im Allgemeinen korreliert der PC1-Wert mit den Phasenfraktionen und dementsprechend ist der Unterschied vor allem im PC1-Wert ausgeprägt. Die PC-Werte für den Datensatz EXP, welcher die Musteranordnung nach Ablauf der Löslichkeitsänderungen beschreibt, zeigen in Abb. 8.14 eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Schliffbildern. Um diese Beobachtung zu quantifizieren, sind die Mittelwerte und die Standardabweichungen der ersten drei PC-Werte in Tabelle 8.4 für die Experimente, EXP und CAL zusammengefasst. Wie auch visuell beobachtet, zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen des Datensatzes EXP und den experimentellen Schliffbildern.

Tabelle 8.4.: Die Mittelwerte und die Standardabweichungen der ersten drei PC-Werte für die Experimente, EXP und CAL.

Basis-Größe	PC1		PC2		PC3	
	Mittelwert	Standard-abweichung	Mittelwert	Standard-abweichung	Mittelwert	Standard-abweichung
Experimente	-0.46	6.87	0.59	1.53	-0.46	1.52
EXP	-3.86	1.05	-0.68	1.75	0.74	2.07
CAL	19.92	0.13	-1.66	5.04	0.46	1.24

8.4.2. Nächste-Nachbarn-Statistiken

Im nächsten Schritt werden die Simulationen und Experimente mit Nächste-Nachbarn-Statistiken quantitativ verglichen. Diese Art von Vergleich ist ebenfalls in [38] publiziert. Es wird beispielhaft das Schliffbild in Abb. 8.5 mit Simulationsergebnissen des Datensatzes CAL, abgebildet in Abb. 8.3, und des Datensatzes EXP aus Abb. 8.4 und 8.6 verglichen. In Abb. 8.15(a) sind die Nächste-Nachbarn-Statistiken von Al_2Cu um Ag_2Al dargestellt und in (b) die Statistiken von Ag_2Al um Al_2Cu . Im Experiment haben sich Kettenstrukturen ausgebildet, was durch die überwiegende Anzahl von zwei Nachbarn sowohl von Al_2Cu um Ag_2Al als auch

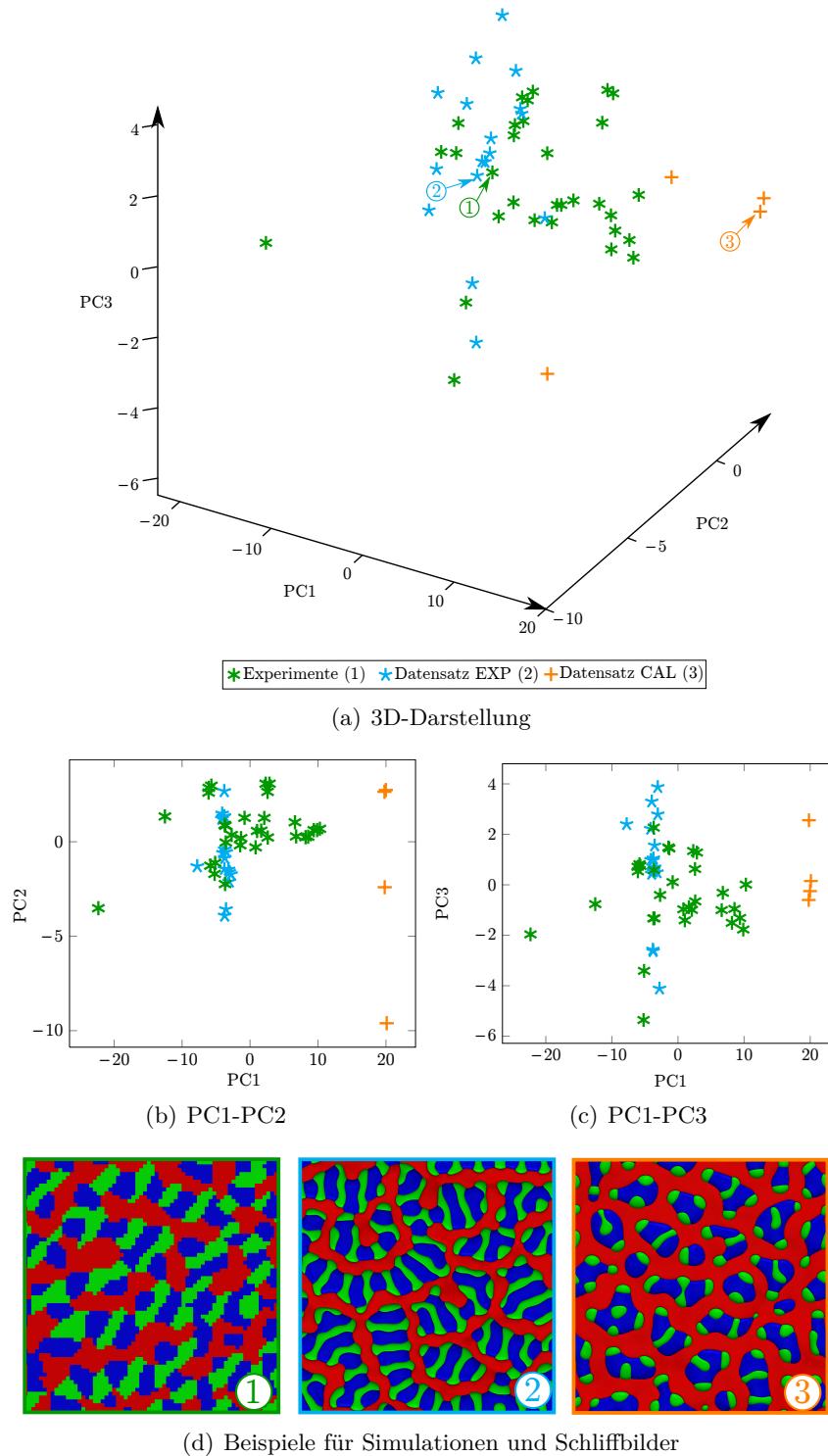


Abbildung 8.14.: Projektionen von Schnittbildern senkrecht zur Wachstumsrichtung in den Raum der ersten drei PC-Werte für die beiden Simulationsdatensätze CAL und EXP und für experimentelle Schliffbilder des Systems Al-Ag-Cu mit verschiedenen Wachstumsgeschwindigkeiten. Die experimentellen Schliffbilder sind teilweise in [16, 17] publiziert. Zusätzlich sind unterhalb der 3D-Darstellung Projektionen in die PC1-PC2- und die PC1-PC3-Ebene dargestellt. Beispiele für experimentelle Schliffbilder (1) und Simulationsergebnisse der beiden Datensätze EXP (2) und CAL (3) sind in den Diagrammen markiert und darunter abgebildet.

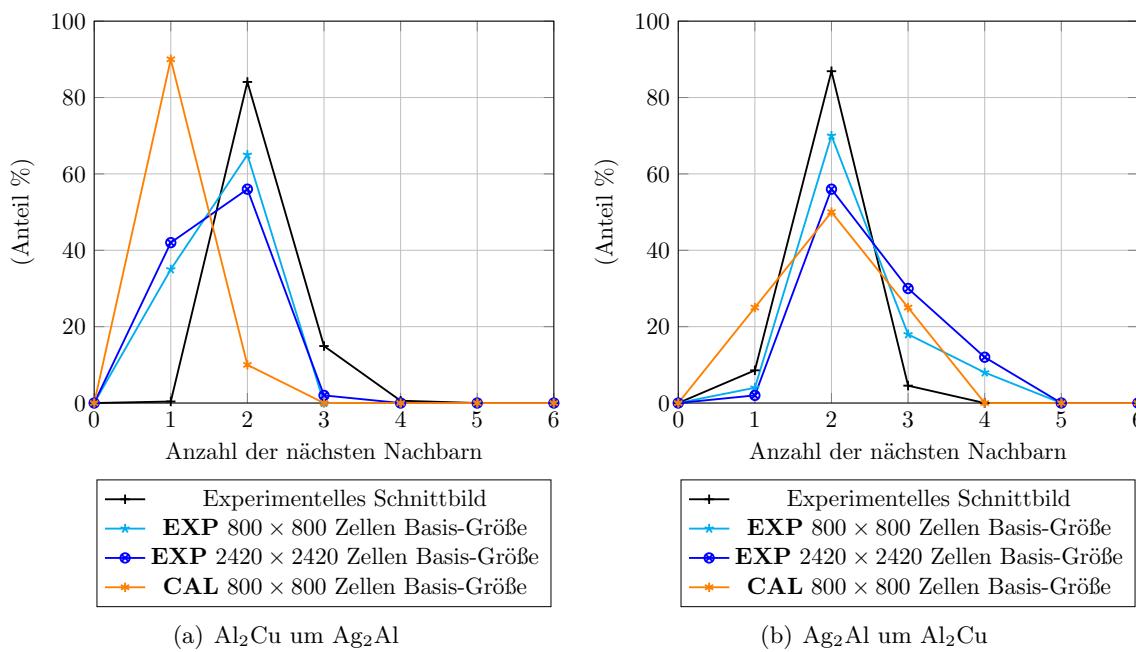


Abbildung 8.15.: Nächste-Nachbarn-Statistiken der Datensätze CAL, EXP sowie von einem experimentellen Schliffbild für die Phasen Al_2Cu und Ag_2Al umeinander.

andersherum reflektiert wird. Da sich in den Simulationen mit dem Datensatz EXP ebenfalls Ketten ausgebildet haben, zeigen sich ähnliche Tendenzen in der Anzahl der nächsten Nachbarn mit einem Maximum bei zwei Nachbarn. Aufgrund der besser ausgerichteten Ketten zeigt sich für das kleinere Gebiet von 800×800 Zellen Basis-Größe eine größere Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment als für die Basis-Größe von 2420×2420 Voxel-Zellen. Der Anteil von 35 % Al_2Cu -Fasern um Ag_2Al mit einem Nachbarn spiegelt die Kettenenden und die einzelnen Fasern in den ebenfalls auftretenden Tatzenstrukturen wider. Für den Datensatz CAL haben sich hauptsächlich kurze, inselartige Strukturen von Al_2Cu um Ag_2Al , eingebettet in die Al-Matrix, entwickelt. Dies wird reflektiert in der hohen Anzahl an einer Al_2Cu -Faser um Ag_2Al , was einen Unterschied zum experimentellen Schliffbild darstellt. Für Ag_2Al um Al_2Cu zeigen sich ähnliche Tendenzen in der Simulation und dem Experiment, allerdings ist der Hochpunkt in Abb. 8.15(b) weniger stark ausgeprägt.

8.4.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Abschnitt wurden Simulationen der beiden Parametersätze CAL und EXP mit experimentellen Schliffbildern quantitativ verglichen. Dazu wurden eine Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen und Nächste-Nachbarn-Statistiken verwendet. Durch die Analyse von Experimenten und Simulationen mit den gleichen Analysewerkzeugen liefern die Ergebnisse einen Beitrag im Bereich der integrierten, computergestützten Materialentwicklung (engl. integrated computational materials engineering (ICME) [4]).

Es zeigt sich eine gute quantitative Übereinstimmung zwischen dem Datensatz EXP, der die Mikrostrukturentwicklung nach der Löslichkeitsänderung abbildet, und den Experimenten. Für

den Datensatz CAL, der die Mikrostrukturentwicklung direkt nach der Erstarrung abbildet, gibt es keine derartig gute Übereinstimmung zum Experiment. Dies deutet darauf hin, dass die Löslichkeitsänderung während der Erstarrung einen großen Einfluss auf die sich entwickelnde Mikrostruktur hat. Da diese simulativ nur mit sehr hohem Rechenaufwand abzubilden ist, wird im Folgenden nur der Datensatz EXP weiter betrachtet.

8.5. Untersuchung der Unterkühlungen

Im ternären eutektischen System Al-Ag-Cu werden unterschiedliche Muster der drei Festphasen in der erstarrten Mikrostruktur beobachtet. Dennstedt et al. [21] haben in experimentellen Schliffbildern sechs unterschiedliche Muster für dieses System klassifiziert. Einige dieser Muster, die in Experimenten (Abb. 8.5) und großskaligen Phasenfeldsimulationen (Abb. 8.6) gefunden werden, sind Kettenstrukturen und sogenannte Tatzenstrukturen.

Bei Kettenstrukturen ist die periodische Länge quer zur Kettenrichtung als λ_1 definiert und die periodische Länge in Kettenrichtung als λ_2 in Übereinstimmung mit [253, 305]. Dies ist beispielhaft in Abb. 8.16(a) veranschaulicht.

Zwei Beispiele für Tatzenstrukturen sind in Abb. 8.16(b) und (c) dargestellt. In den Simulationen bilden sich die Tatzenstrukturen als einzelne Ag₂Al-Fasern an den Grenzflächen zwischen Al- und Al₂Cu-Lamellen. Dieses Muster kann mit nebeneinander (b) oder versetzt (c) liegenden Ag₂Al-Fasern auftreten. Bei Tatzenstrukturen ist die periodische Länge in Lamellenrichtung definiert als λ_2 und die Richtung quer dazu als λ_1 .

Um den Entstehungsprozess der auftretenden Muster in Abhängigkeit von der Unterkühlung zu untersuchen, wurden die drei Muster mit unterschiedlichen periodischen Abständen λ_1 und λ_2 simuliert und ihre Unterkühlung gemessen. Zunächst werden die durchschnittlichen Frontunterkühlungen für Kettenstrukturen mit analytischen Ansätzen (HU1999 und HU_{gleiches ΔT}), wie in Abschnitt 5.3 beschrieben, verglichen. Für Tatzenstrukturen sind derartige Ansätze in der Literatur nicht publiziert. Anschließend werden die resultierenden Unterkühlungen mit einem Ergebnis aus einer großskaligen Simulation mit einer Gesamtgebietsgröße von $4116 \times 4088 \times 4325$ Voxel-Zellen verglichen. Ähnlich wie für die Ergebnisse in Abschnitt 6.2 wird zur Untersuchung der Unterkühlungen in den kleinskaligen Simulationen eine initiale Quaderstruktur verwendet. Unter Ausnutzung der periodischen Randbedingungen werden die periodischen Längen nur als ein Vielfaches von λ_1 und λ_2 in der Basis-Ebene simuliert. Für die Simulationen im folgenden Abschnitt wird ein entdimensionalisierte Temperaturgradient von $8 \cdot 10^{-4} K/(T_{eut}[K] \cdot Zelle)$ verwendet. Dieser relativ steile Temperaturgradient wurde gewählt, da er eine schnelle Konvergenz der Unterkühlung ermöglicht und damit eine Verringerung des notwendigen Rechenaufwandes.

8.5.1. Jackson-Hunt-Analyse in 3D und Vergleich mit analytischen Ansätzen

Für die Untersuchung des Einflusses verschiedener lamellarer Abstände in den auftretenden 3D-Mustern wurden umfangreiche Phasenfeldsimulationsstudien mit dem Datensatz EXP durchgeführt. Für die Kettenstruktur wurden insgesamt 242 dreidimensionale Simulationen

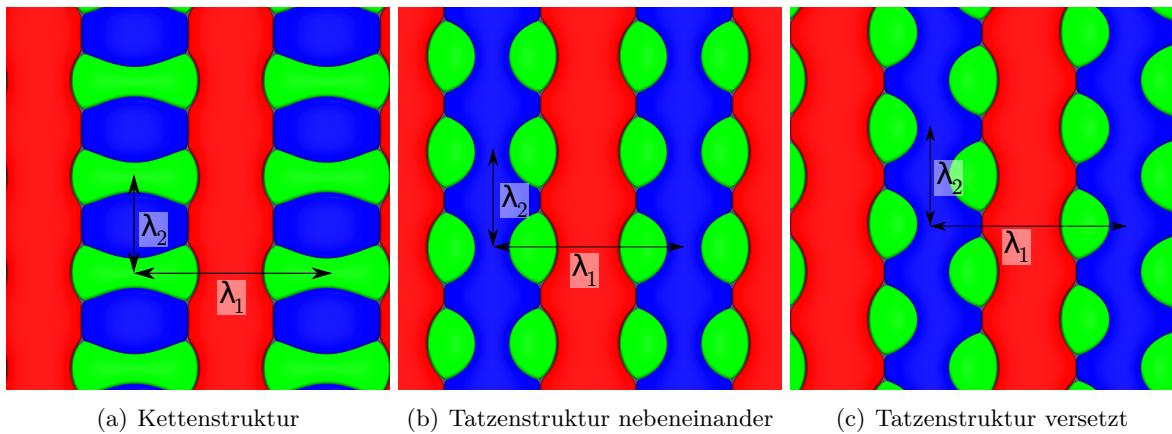


Abbildung 8.16.: Phasenanordnungen der simulierten Mikrostrukturen des Datensatzes EXP zur Untersuchung der Unterkühlung im System Al-Ag-Cu. In (a) ist eine Kettenstruktur, in (b) eine Tatzenstruktur mit nebeneinander liegenden Ag_2Al -Fasern und in (c) eine Tatzenstruktur mit versetzt liegenden Ag_2Al -Fasern dargestellt. Zusätzlich sind die periodischen Längen λ_1 und λ_2 für die verschiedenen Muster eingezeichnet.

auf jeweils 200 CPUs mit 1.5 Millionen Zeitschritten für bis zu 190 Minuten auf dem HazelHen-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart simuliert. Die lamellaren Abstände wurden von $\lambda_1 = 50$ bis 160 und von $\lambda_2 = 35$ bis 85 in Schritten von je 5 Zellen variiert.

Die Unterkühlungen der Simulationen mit Kettenmuster sind in Abb. 8.17 als rote Punkte über den beiden lamellaren Abständen aufgetragen. Als grüne Hyperebene sind die Ergebnisse mit der Analytik HU1999 [253, 305] dargestellt und in blau die Ergebnisse von $\text{HU}_{\text{gleiches } \Delta T}$ aus Abschnitt 5.3 und [327]. Für die Unterkühlungen aus Simulationen und aus beiden Analytiken zeigt sich ein Jackson-Hunt-Verhalten mit einem globalen Minimum bei λ_{JH} . Das Minimum in den Simulationen liegt bei $\lambda_1 = 100$ Zellen und bei $\lambda_2 = 45$ Zellen. Für HU1999 unterscheiden sich die λ_{JH} um ca. 28 Zellen in euklidischer Metrik und ihre Unterkühlungen um ungefähr 27 %, bezogen auf den analytischen Wert. Der Unterschied in den λ_{JH} für $\text{HU}_{\text{gleiches } \Delta T}$ liegt bei näherungsweise 14 Zellen und ihre Unterkühlungen unterscheiden sich um ca. 17 %, bezogen auf den analytischen Wert. Die Ergebnisse der Simulationen liegen zwischen den beiden analytischen Ansätzen.

Die Abweichungen zwischen Simulation und Analytik sind größer als die für das ideale System in Abschnitt 6.2. Dies kann, wie auch in [152, 304] diskutiert, mit den Annahmen in den analytischen Berechnungen erklärt werden. Durch die unsymmetrisch modellierten Gibbs-Energien auf dem Konzentrationssimplex in dem Realsystem ist die Annahme von HU1999, dass die Konzentrationen in den Festphasen denen am eutektischen Punkt entsprechen, verletzt. Weiterhin ändern sich durch die ungleichen Grenzflächenenergien die Krümmungen der Erstarrungsfront, wodurch sich die durchschnittlichen Frontunterkühlungen der drei Festphasen voneinander unterscheiden. In $\text{HU}_{\text{gleiches } \Delta T}$ wird allerdings die Annahme gleicher durchschnittlicher Frontunterkühlungen in den Festphasen zum Erreichen eines eindeutig lösbarer Satzes linear unabhängiger Gleichungen verwendet.

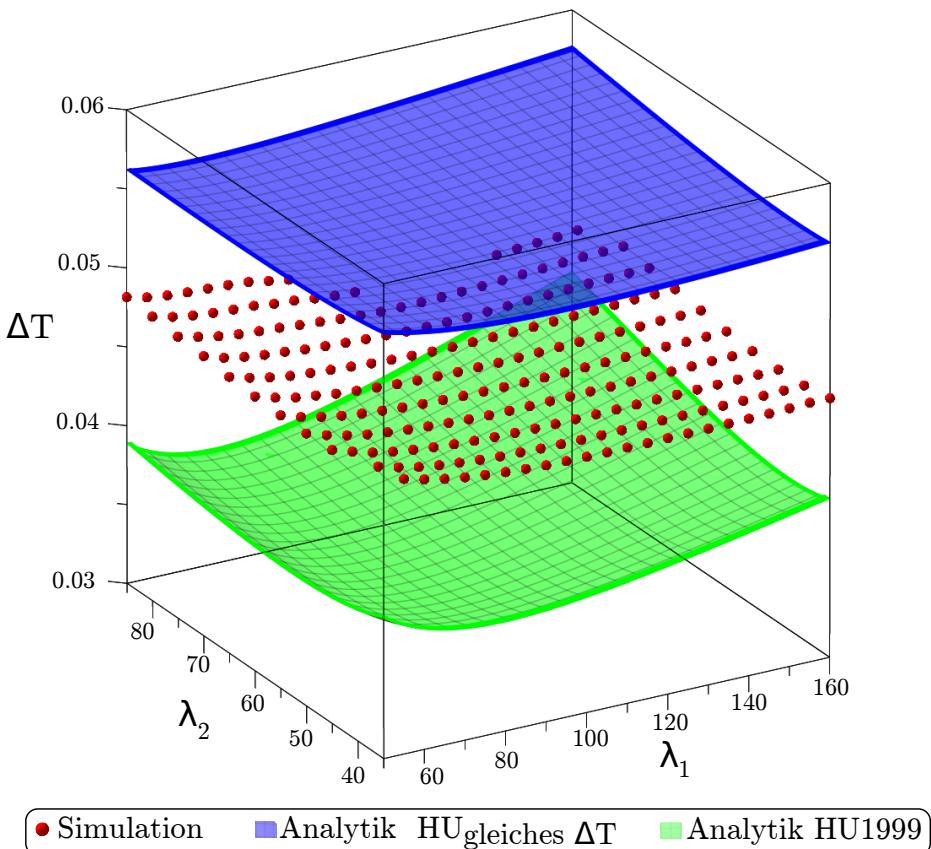


Abbildung 8.17.: Durchschnittliche Frontunterkühlungen während der gerichteten Erstarrung des Datensatzes EXP in einer Kettenstruktur über den beiden lamellaren Abständen. Die Ergebnisse der Phasenfeldsimulationen sind mit roten Punkten dargestellt und die analytischen Werte von $\text{HU}_{\text{gleiches } \Delta T}$ und HU1999 als blaue und grüne Hyperebenen.

Bei der Berechnung der krümmungsbedingten Unterkühlung $\Delta T_{\text{Krümmung}}$ in den analytischen Ansätzen werden die Krümmungen in die beiden Richtungen der Basis-Ebene als unabhängig voneinander angenommen und anschließend werden die Hauptkrümmungen mit einem arithmetischen Ansatz gemittelt. Dadurch kann es insbesondere in Tripel- und Quadrupelpunkten zu Abweichungen von der sich einstellenden Krümmung kommen. Die Festphasen in den Ebenen parallel zur Erstarrungsfront sind als Rechtecke modelliert. Die realen Gleichgewichtsformen aufgrund ungleicher Grenzflächenenergien werden dabei weder in der Berechnung der Konzentrationsfelder, noch in der Berechnung der Krümmungsterme in den Analytiken betrachtet. Weiterhin wird in den analytischen Ansätzen stationäres Wachstum vorausgesetzt. Oszillierende Phasenbreiten, wie sie bei Abweichungen von λ_{JH} auftreten können, werden daher nicht abgebildet.

Trotz der verwendeten Annahmen liegen die Unterkühlungen der Simulationen zwischen den beiden analytischen Ansätzen und die Form der Flächen ist bei beiden Analytiken und den Simulationen ähnlich. Dies deutet darauf hin, dass auch für ein reales System das

verwendete Phasenfeldmodell den Zusammenhang zwischen den lamellaren Abständen, der durchschnittlichen Frontunterkühlung und der Wachstumsgeschwindigkeit gut abbildet.

8.5.2. Vergleich der Unterkühlungen bei verschiedenen Mustern und Erklärungsansatz für unterschiedliche Muster in großskaligen Simulationen

Nach der gezeigten, qualitativ guten Übereinstimmung zwischen Simulationen und analytischen Ansätzen, werden im Folgenden die Unterkühlungen von Tatzenstrukturen, wie sie in Abb. 8.16(b) und (c) dargestellt sind, untersucht. Da für diese Muster keine analytischen Ansätze für die Frontunterkühlungen in Abhängigkeit von den lamellaren Abständen und der Wachstumsgeschwindigkeit publiziert sind, werden sie untereinander und mit den Ergebnissen der Kettenstrukturen verglichen. Die Simulationen wurden mit jeweils 200 CPUs für bis zu 180 Minuten auf dem HazelHen-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart durchgeführt. Die Unterkühlungen der Kettenstrukturen ohne die analytischen Ansätze sind in Abb. 8.18(a) über λ_1 und λ_2 dargestellt.

Um die Bereiche stabilen Wachstums zu bestimmen, wurden für die in Abb. 8.16(b) dargestellte Tatzenstruktur mit nebeneinander liegenden Fasern insgesamt 125 dreidimensionale Simulationen mit systematisch variiertem λ_1 und λ_2 durchgeführt. Dabei wurde λ_1 in Schritten von je 10 Zellen von 50 auf 150 Zellen und λ_2 in Schritten von 5 Zellen von 25 auf 85 Zellen erhöht. Ähnlich wie in den Kettenstrukturen können Musteränderungen für bestimmte lamellare Abstände auftreten, was mit einer Veränderung der Unterkühlung einhergeht. Daher sind in Abb. 8.18(b) nur die Unterkühlungen der Simulationen über den beiden lamellaren Abständen aufgetragen, bei denen sich eine stabile Tatzenstruktur mit nebeneinander liegenden Fasern einstellt.

Für die Untersuchung der sich einstellenden Unterkühlung während der gerichteten Erstarrung von Tatzenstrukturen mit versetzt liegenden Fasern (siehe Abb. 8.16(c)) wurden insgesamt 226 dreidimensionale Simulationen mit $\lambda_1 = 65$ bis 150 Zellen und $\lambda_2 = 30$ bis 105 in Schritten von je 5 Zellen durchgeführt. Die Unterkühlungen der Simulationen, in denen sich eine stabile Tatzenstruktur mit versetzt liegenden Fasern ausbildet, sind in Abb. 8.18(c) über den beiden lamellaren Abständen geplottet. Die gemessenen Unterkühlungen in Abb. 8.18 sind als rote, grüne und blaue Punkte entsprechend der drei untersuchten Muster dargestellt. Zusätzlich sind die Punkte mit interpolierten Linien und Flächen verbunden, um den dreidimensionalen Verlauf zu verdeutlichen.

Bei allen drei Mikrostrukturmustern stellt sich ein Jackson-Hunt-Verlauf mit einem globalen Minimum bei λ_{JH} ein. Die Verläufe der Punkte unterscheiden sich in Richtung der beiden lamellaren Abstände. Die Minima liegen für das Kettenmuster bei $\lambda_1 = 105$ und $\lambda_2 = 45$, für die Tatzenstruktur mit nebeneinander liegenden Ag₂Al-Fasern bei $\lambda_1 = 100$ und $\lambda_2 = 50$ und für die andere Tatzenstruktur bei $\lambda_1 = 95$ und $\lambda_2 = 55$. Ihre Unterkühlungen sind in Tabelle 8.5 eingetragen. Das Tatzenmuster mit versetzten Fasern hat die geringste Unterkühlung beim jeweiligen λ_{JH} . Die absoluten Minima der drei Muster liegen relativ nah beieinander, verglichen mit den anderen Unterkühlungen der Kurven. Dies deutet darauf hin, dass es energetisch gesehen relativ einfach ist von einem Muster in das andere umzuschlagen.

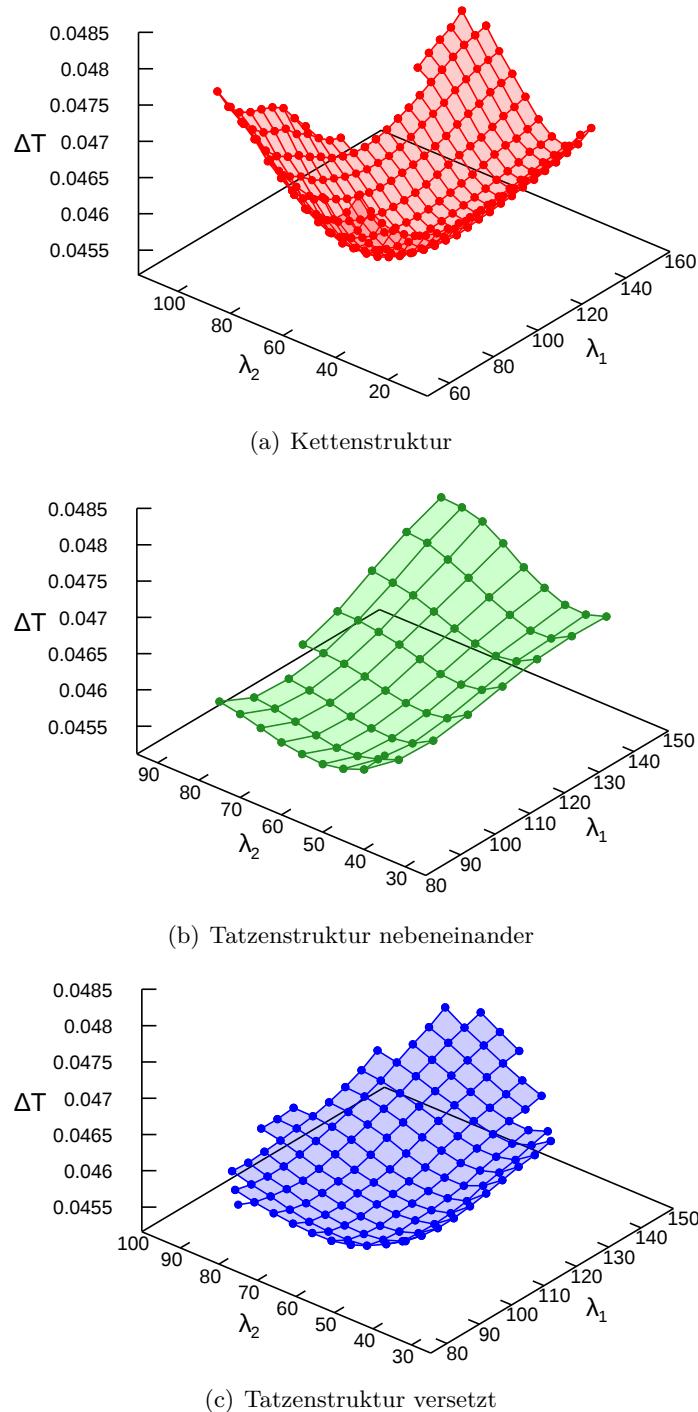


Abbildung 8.18.: Unterkühlungen der Simulationen mit den physikalischen Parametern des Datensatzes EXP und (a) Kettenstrukturen, (b) Tatzenstrukturen mit nebeneinander liegenden Ag₂Al-Fasern und (c) Tatzenstrukturen mit versetzt liegenden Ag₂Al-Fasern. Zusätzlich zu den gemessenen Unterkühlungen aus den Simulationen, die als Punkte markiert sind, sind interpolierte Linien zwischen den Punkten und interpolierte Flächen eingetragen, um den dreidimensionalen Verlauf zu verdeutlichen.

Um die relative Lage der Unterkühlungskurven zueinander zu untersuchen, sind in Abb. 8.19 die Werte der drei Muster über λ_2 mit $\lambda_1=\text{konstant}$ aufgetragen ($\lambda_1 = 80, 100$ und 140 Zellen) und zusätzlich ΔT über λ_1 mit $\lambda_2=\text{konstant}$ ($\lambda_2 = 40, 60$ und 80 Zellen). In den Diagrammen sind die Simulationen eingetragen, bei denen sich stabile Muster ohne Umschlag ausgebildet haben. Die Werte der Kettenstrukturen sind mit roten Kreisen, die Tatzenstrukturen mit nebeneinander liegenden Fasern mit grünen Dreiecken und die anderen Tatzenstrukturen mit blauen Quadraten dargestellt. Die Farben der Muster sind analog zu denen in Abb. 8.18 gewählt.

In den Schnitten bilden sich außer am Rand der Stabilitätsbereiche Jackson-Hunt-Verläufe aus. Dies ist in Übereinstimmung mit vorherigen Untersuchungen des idealen Systems in Abschnitt 6.2, bei denen Übergangsbereiche der Muster und der Unterkühlungen für die Grenzen der stabilen lamellaren Abstände beobachtet wurden.

Für die untersuchten lamellaren Abstände hat die Tatzenstruktur mit versetzten Fasern eine geringere Unterkühlung als die korrespondierende Simulation mit nebeneinander liegenden Fasern. Die Kettenstruktur hat den größten Bereich stabiler lamellarer Abstände, was einen Erklärungsansatz dafür liefert, dass in großkaligen Simulationen dieses Datensatzes ausgeprägte Kettenstrukturen auftreten, obwohl das λ_{JH} nicht die geringste Unterkühlung aller λ_{JH} aufweist.

Zusätzlich zeigt sich, dass abhängig von den lamellaren Abständen Bereiche existieren, bei denen das Muster mit der geringsten Unterkühlung wechselt. Für 2D-Phasenfeldsimulationen mit verschiedenen lamellaren Anordnungen haben Choudhury et al. [270] hergeleitet, dass die Anordnungen mit der geringsten Unterkühlung die höchste Stabilität besitzen. Die Übergänge deuten darauf hin, dass in Abhängigkeit von den lamellaren Abständen, die wiederum von den lokalen Phasenanordnungen abhängen, unterschiedliche Muster energetisch gesehen am günstigsten sind. Dies liefert einen Erklärungsansatz dafür, dass unterschiedliche Muster gleichzeitig in Schliffbildern des Systems Al-Ag-Cu bei denselben Prozessbedingungen existieren.

In den Simulationen zur Untersuchung der Unterkühlungen sind die beiden Tatzenstrukturen und das Kettenmuster ausgehend von einer initialen Mikrostruktur, die aus Quadern besteht, welche bereits die Form des jeweiligen Musters abgebildet haben, erstarrt. Für eine Untersuchung einer sich frei entwickelnden Musteranordnung sind Keime deutlich kleiner als die Größe der Fasern und Lamellen in der ausgebildeten Mikrostruktur auf großen Gebieten notwendig [71]. Um das gleichzeitige Entstehen unterschiedlicher Muster zu analysieren, wird im Folgenden das Ergebnis einer großkaligen Simulation gerichteter ternärer eutektischer Erstarrung des Systems Al-Ag-Cu aus einer zufällig gesetzten initialen Mikrostruktur vorgestellt. Die entstehende dreidimensionale Mikrostruktur ist in Abb. 8.20 dargestellt.

In der Simulation wurde ein Gesamtgebiet der Größe $4116 \times 4088 \times 4325$ Voxel-Zellen, unter Ausnutzung eines gleitenden Simulationsfensters berechnet (siehe Kapitel 4). Die Simulation lief für ca. 6.7 Stunden auf 171 696 CPUs auf dem HazelHen-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart. In dieser Zeit wurden 1.85 Millionen Zeitschritte berechnet, um die Entwicklung einer ausgebildeten Mikrostruktur zu ermöglichen. Im Rahmen dieser Rechnung wurden ca $1.04 \cdot 10^{15}$ Rechenoperationen pro Sekunde durchgeführt.

Um die Entwicklung unterschiedlicher Muster in der Mikrostruktur ähnlich wie in Experimenten [21, 69] zu zeigen, ist die Erstarrungsfront am Ende der Simulation in Abb. 8.21 abgebildet. Eine Auswahl der entstehenden Muster ist in den Vergrößerungen der Erstarrungsfront in Abb. 8.21

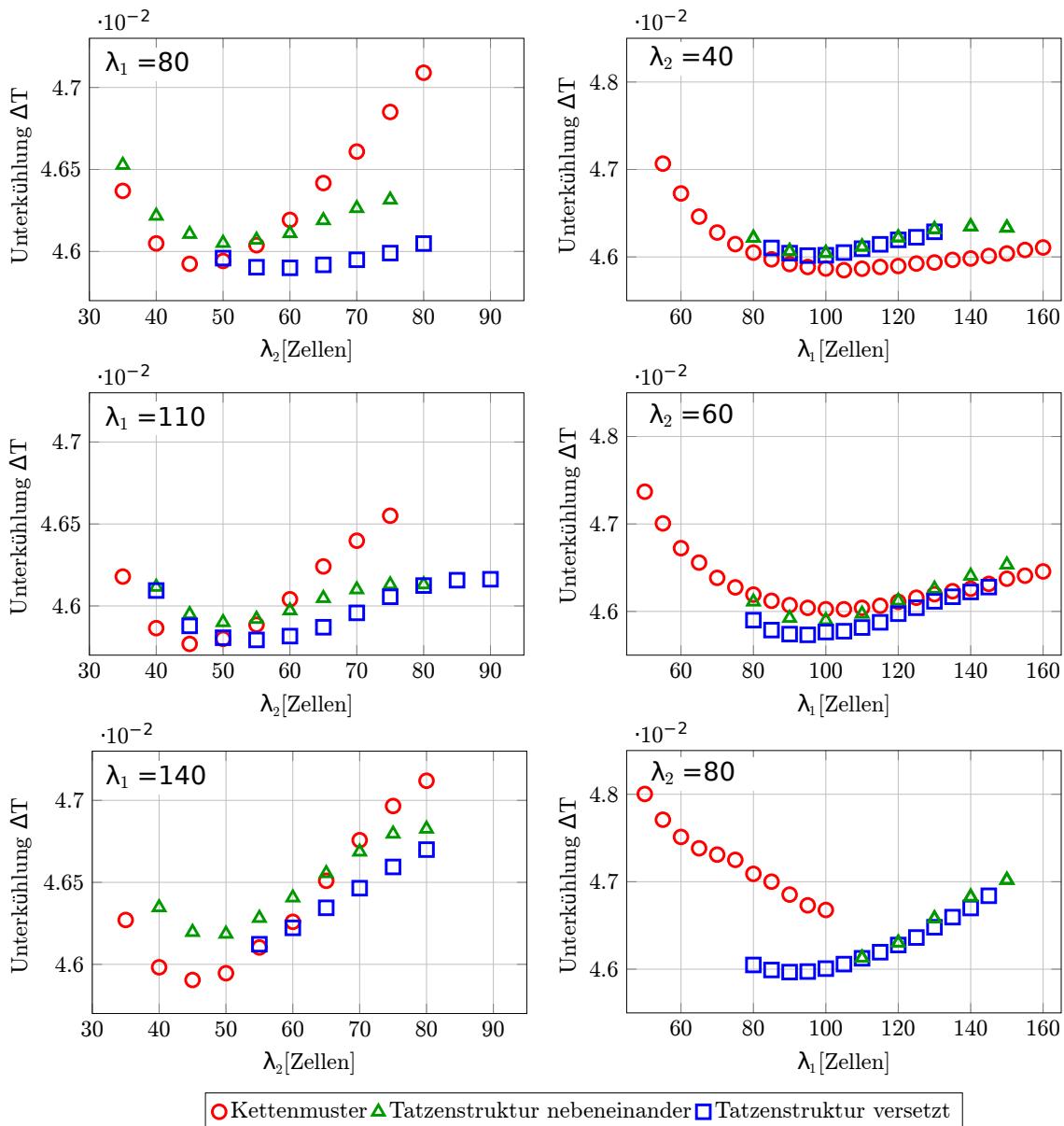


Abbildung 8.19.: Gemessene Unterkühlungen der Simulationen über den lamellaren Abständen für λ_1 bei λ_2 =konstant und andersherum. Die Werte der Kettenstrukturen sind in rot, die der Tatzenstrukturen mit nebeneinander liegen Fasern in grün und die der anderen Tatzenstrukturen in blau dargestellt.

dargestellt. In der Simulation bilden sich Kettenmuster und unterschiedliche Tatzenstrukturen ähnlich wie die zuvor untersuchten Muster aus. Dabei variieren die lamellaren Abstände in Abhängigkeit von den lokalen Phasenanordnungen, wie z. B. in der Vergrößerung links unten zu sehen. Insbesondere für die Kettenstrukturen variiert die Breite in λ_1 -Richtung. Zusätzlich bilden sich irreguläre Strukturen wie Verzweigungen (unteres Bild in der linken Spalte), Ringanordnungen (oberes Bild in der rechten Spalte) oder Inselstrukturen (linkes Bild in der oberen Zeile).

Obwohl eine Vielzahl verschiedener Muster mit unterschiedlichen lamellaren Abständen entsteht, scheinen sich optisch überwiegend Kettenstrukturen zu entwickeln. Zur weiteren Analyse des Simulationsergebnisses werden im Folgenden die resultierende Gesamtunterkühlung und die lamellaren Abstände untersucht.

Wie in Tabelle 8.5 zu sehen, ist die konvergierte Gesamtunterkühlung in der großkaligen Simulation (siehe Abb. 8.20) größer als die jeweiligen Unterkühlungen bei den λ_{JH} des Kettenmusters und der beiden Tatzenstrukturen (siehe Abb. 8.16).

Um die Verteilung der lamellaren Abstände zu bestimmen, wurden die minimalen Abstände der Schwerpunkte der grünen Ag_2Al -Fasern in der Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung in euklidischer Metrik gemessen. Dazu wurde zunächst für jede Ag_2Al -Faser die Entfernung zum Schwerpunkt der nächsten Ag_2Al -Faser bestimmt, wobei berücksichtigt wurde, ob sich zwischen den Fasern eine Al- oder eine Al_2Cu -Phase befindet. Dabei ist x_1 definiert als der minimale Abstand der Schwerpunkte zweier Ag_2Al -Fasern mit einer Al-Phase in der Mitte zwischen den Fasern. Entsprechend ist x_2 definiert als der minimale Abstand mit Al_2Cu in der Mitte zwischen den Fasern.

Tabelle 8.5.: Unterkühlungswerte der Simulationen mit idealisierten Mustern (Abb. 8.16) und der großkaligen Simulation (Abb. 8.20) für die lamellaren Abstände der jeweiligen λ_{JH} und den gemessenen Abständen der großkaligen Simulation x_1 und x_2 .

	λ_1 bzw. x_1	λ_2 bzw. x_2	Unterkühlung
Kettenstruktur	105	45	$4.5750 \cdot 10^{-2}$
Kettenstruktur	85	57.5	$4.6049 \cdot 10^{-2}$
Tatzenstruktur nebeneinander	100	50	$4.5840 \cdot 10^{-2}$
Tatzenstruktur nebeneinander	85	57.5	$4.5995 \cdot 10^{-2}$
Tatzenstruktur versetzt	95	55	$4.5715 \cdot 10^{-2}$
Tatzenstruktur versetzt	85	57.5	$4.5785 \cdot 10^{-2}$
Großkalige Simulation	85	57.5	$4.6139 \cdot 10^{-2}$

Zur Untersuchung der Aufteilung der x_1 - und x_2 -Werte, ähnlich den senkrecht aufeinander stehenden λ_1 - und λ_2 -Werten, sind in Abb. 8.22 die Verteilungen von x_1 und x_2 aufgetragen, bei denen der Winkel zwischen den beiden Längen zwischen 60° und 120° liegt. Durch diese Einschränkung gehen irreguläre Strukturen, wie etwa Verzweigungen, nicht in die Statistik ein.

Es zeigt sich, dass x_1 stärker streut als x_2 , was die höhere Variation in λ_1 -Richtung bei den Kettenstrukturen widerspiegelt. Das Maximum von x_1 liegt bei ca. 85 Zellen und die größte Wahrscheinlichkeit von x_2 bei ungefähr 57.5 Zellen. Diese Werte liefern Näherungen für die entstehenden λ_1 - und λ_2 -Werte in der großkaligen Simulation. Die Unterkühlungen für diese Werte von λ_1 und λ_2 der unterschiedlichen Muster sind ebenfalls in Tabelle 8.5 angegeben. Es zeigt sich, dass die Werte für das Kettenmuster die geringste Abweichung zu der Gesamtunterkühlung in der großkaligen Simulation aufweisen.

Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass sich lokal das Muster ausbildet, welches unter Berücksichtigung der benachbarten Phasenanordnungen die geringste Abweichung von der Gesamtunterkühlung hat.

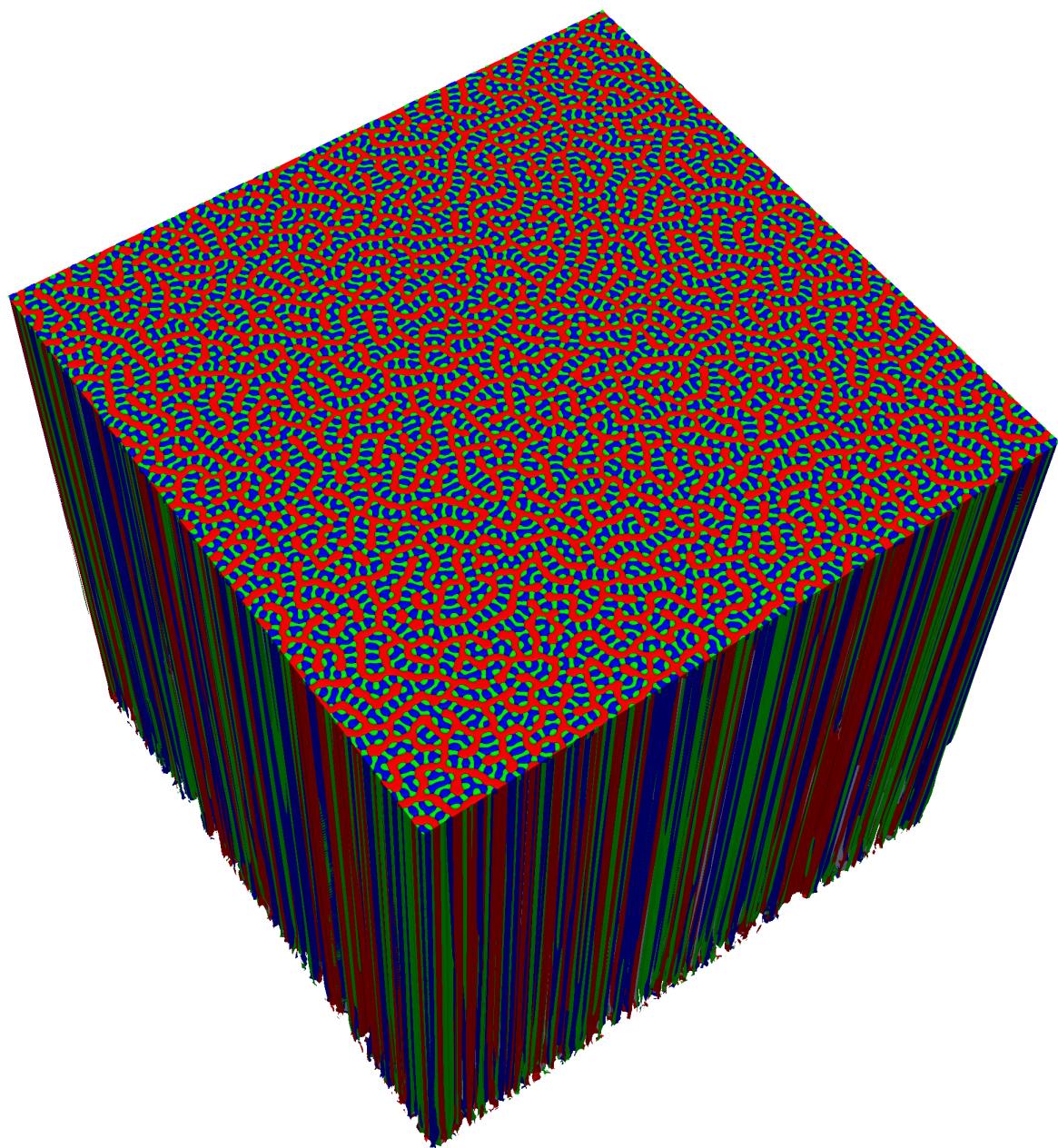


Abbildung 8.20.: Ergebnis einer Simulation ternärer eutektischer Erstarrung von Al-Ag-Cu mit der Phasenfeldmethode unter Ausnutzung eines gleitenden Simulationsfensters. Die Simulation hat eine Gesamtgebietsgröße von $4116 \times 4088 \times 4325$ Voxel-Zellen und lief für ca. 6.7 Stunden auf 171 696 CPUs auf dem HazelHen-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart.

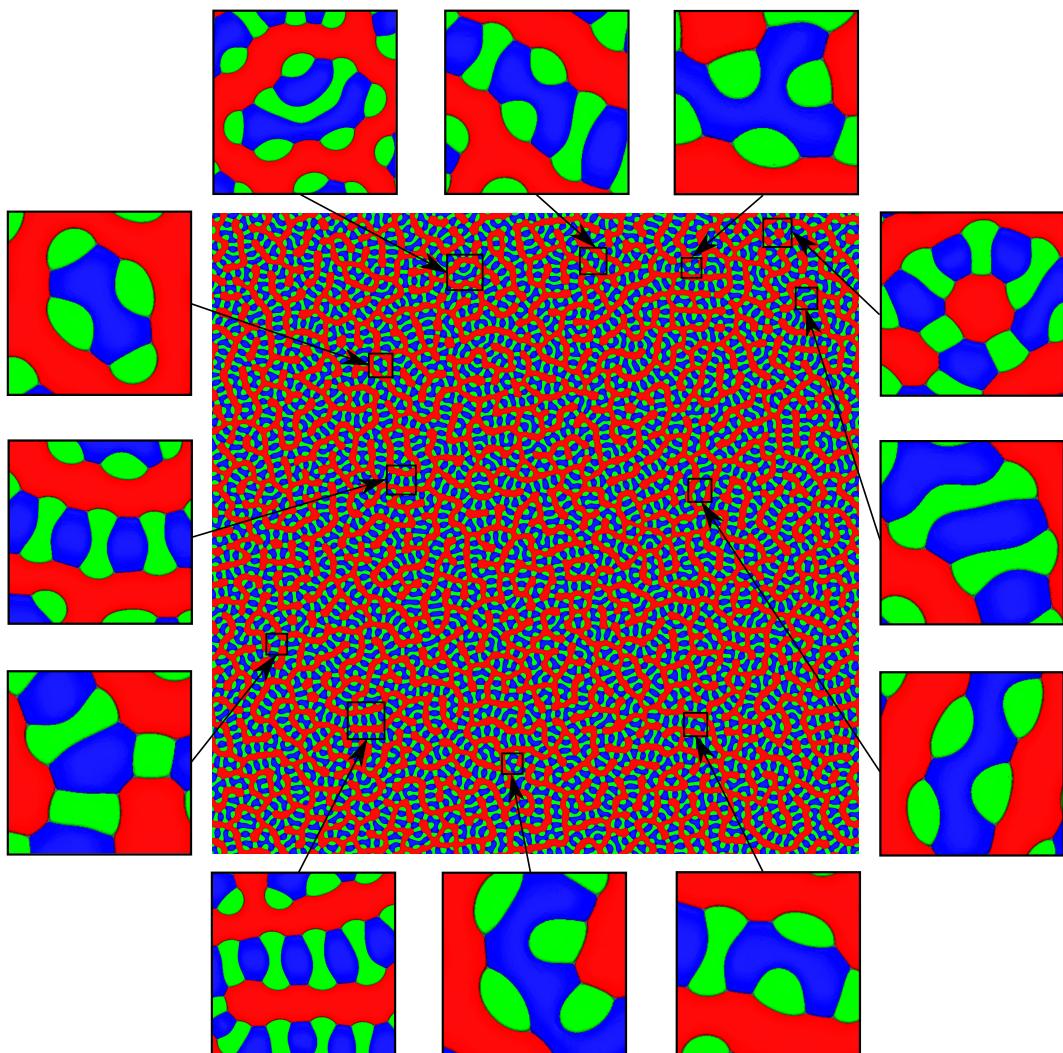


Abbildung 8.21.: Erstarrungsfront der großskaligen Simulation mit einer Basis-Größe von 4116×4088 Voxel-Zellen. Zusätzlich sind Vergrößerungen der verschiedenen entstehenden Mikrostrukturen um das Simulationsergebnis herum angeordnet.

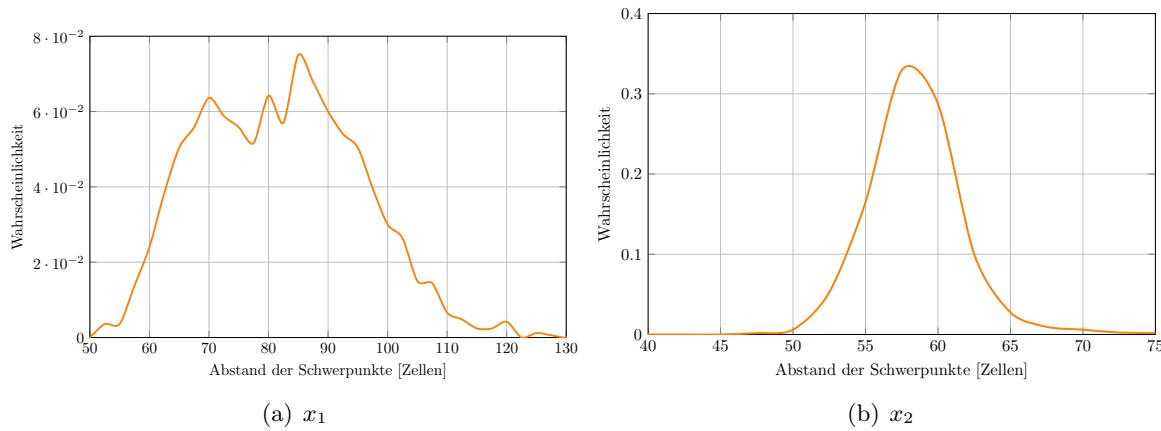


Abbildung 8.22.: Verteilung der minimalen Abstände zwischen den Schwerpunkten der Ag_2Al -Fasern mit (a) einer Al-Phase in der Mitte zwischen den Fasern (x_1) und (b) einer Al_2Cu -Phase zwischen den Fasern (x_2). Um die Verteilung der x_1 - und x_2 -Werte ähnlich den senkrecht aufeinander stehenden λ_1 - und λ_2 -Werten zu untersuchen, sind nur die Verteilungen mit Winkel zwischen den beiden Längen von 60° und 120° berücksichtigt.

8.5.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Abschnitt wurde die sich entwickelnde Unterkühlung im System Al-Ag-Cu während der gerichteten Erstarrung untersucht. Dazu wurden dreidimensionale Simulationsserien mit unterschiedlichen Phasenanordnungen und systematisch variierten lamellaren Abständen durchgeführt.

Aus den Untersuchungen lassen sich folgenden Haupterkenntnisse ziehen:

- (i) Für das Kettenmuster ergeben sich qualitativ ähnliche Ergebnisse in den Unterkühlungen der Simulationen und den beiden verwendeten analytischen Ansätzen. Die quantitativen Abweichungen sind dabei größer als in dem idealen ternären eutektischen System aus Kapitel 6.
 - (ii) Bei allen drei untersuchten Mikrostrukturen (Kettenmuster, Tatzenstrukturen mit nebeneinander liegenden Ag_2Al -Fasern und versetzten Ag_2Al -Fasern) folgen die Unterkühlungen dem von Jackson und Hunt theoretisch vorhergesagten Verlauf [240].
 - (iii) Für die drei Muster sind sowohl die lamellaren Abstände bei λ_{JH} als auch deren Unterkühlungen relativ ähnlich. Zusätzlich ändert sich in Abhängigkeit von den betrachteten lamellaren Abständen das Muster mit der geringsten Unterkühlung. Dies ermöglicht einen leichteren Umschlag zwischen den verschiedenen Mustern.
 - (iv) In der großskaligen Simulation ist die konvergierte Gesamtunterkühlung größer als die minimalen Unterkühlungen der jeweiligen idealisierten Muster. Allerdings ergeben sich für die x_1 - und x_2 -Werte mit der höchsten Wahrscheinlichkeit ähnliche Unterkühlungen wie für die korrespondierenden λ_1 - und λ_2 -Werte der Kettenstruktur. Dies deutet darauf

hin, dass die lokalen Muster aus einem Optimierungsprozess der Unterkühlung und der Phasenanordnung in der unmittelbaren Nachbarschaft entstehen.

Bei den in diesem Abschnitt durchgeführten Simulationen zur Untersuchung der entstehenden Musteranordnung hatte die Schmelze immer eine Zusammensetzung ähnlich der ternären eutektischen Zusammensetzung. Um den Einfluss unterschiedlicher Konzentrationen in der Schmelze zu analysieren, werden im Folgenden großskalige Simulationen mit systematisch variierter Schmelzzusammensetzung durchgeführt.

8.6. Einfluss der Konzentration der Schmelze auf die auftretenden Muster

In großskaligen Phasenfeldsimulationen können, wie in Abschnitt 6.6 gezeigt und ebenfalls in [71] publiziert, verschiedene ausgerichtete hexagonale Muster für ein ideales ternäres eutektisches System beobachtet werden. Dieses Verhalten tritt auch in experimentellen Schliffbildern gerichtet erstarrter, ternärer eutektischer Legierungen auf. Zusätzlich bilden sich in diesen Systemen unterschiedliche Muster in Schliffbildern parallel zur Wachstumsfront. Für das System Al-Ag-Cu haben Dennstedt et al.[21] sechs Muster experimentell beobachtet und charakterisiert. Für die gleichen aufgeprägten Prozessbedingungen werden unterschiedliche Muster innerhalb eines einzigen Schliffbildes parallel zur Erstarrungsfront gefunden, wie beispielhaft in dem Schliffbild des Systems Al-Ag-Cu in Abb. 8.23 zu sehen ist. In der oberen rechten Ecke haben sich Tatzenstrukturen und im linken unteren Teil Kettenmuster ausgebildet, die durch Übergangszonen voneinander getrennt sind. Zwei Beispiele für diese unterschiedlichen Strukturen sind durch Vergrößerungen unter dem Schliffbild hervorgehoben. Es wird vermutet, dass die Übergangszonen Korngrenzen sind. Zu einer Bestätigung wäre allerdings eine Charakterisierung der kristallographischen Orientierung, z. B. mit Elektronenrückstreubeugung (EBSD), notwendig. Die gesamte Probe ist unter gleichmäßig aufgeprägten Prozessbedingungen mit einer Erstarrungsgeschwindigkeit von $0.32 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von $2.8 \text{ K}/\text{mm}$ in einer Artemis-Anlage [163] gerichtet erstarrt. Das Schnittbild stammt von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt in Köln, Deutschland.

8.6.1. Systematische Variation der Konzentrationen in der Schmelze

Zur Untersuchung der gleichzeitigen Ausbildung verschiedener Muster unter identisch aufgebrachten Prozessbedingungen wird der Einfluss von verschiedenen Konzentrationen in der Schmelze des Systems EXP studiert. In Experimenten kann es während einer langsamen, d.h. diffusionskontrollierten, gerichteten Erstarrung zu lokal unterschiedlichen Konzentrationen in der Schmelze kommen, wenn die initiale Zusammensetzung des aufgeschmolzenen Materials inhomogen ist, wenn es zu Konvektionsbewegungen [254] aufgrund äußerer Störungen und Felder kommt oder die Prozessbedingungen nicht gleichmäßig aufgebracht sind. Um die Auswirkungen dieser lokalen Konzentrationsunterschiede zu untersuchen, wird in großskaligen Phasenfeldsimulationen die Konzentration der Schmelze c_{liq} in der Nähe der ternären eutektischen Zusammensetzung bei E_{Exp} systematisch, parallel zu den drei Achsen des Konzentrationssimplexes, variiert. Dazu wird eine der Konzentrationen konstant gehalten

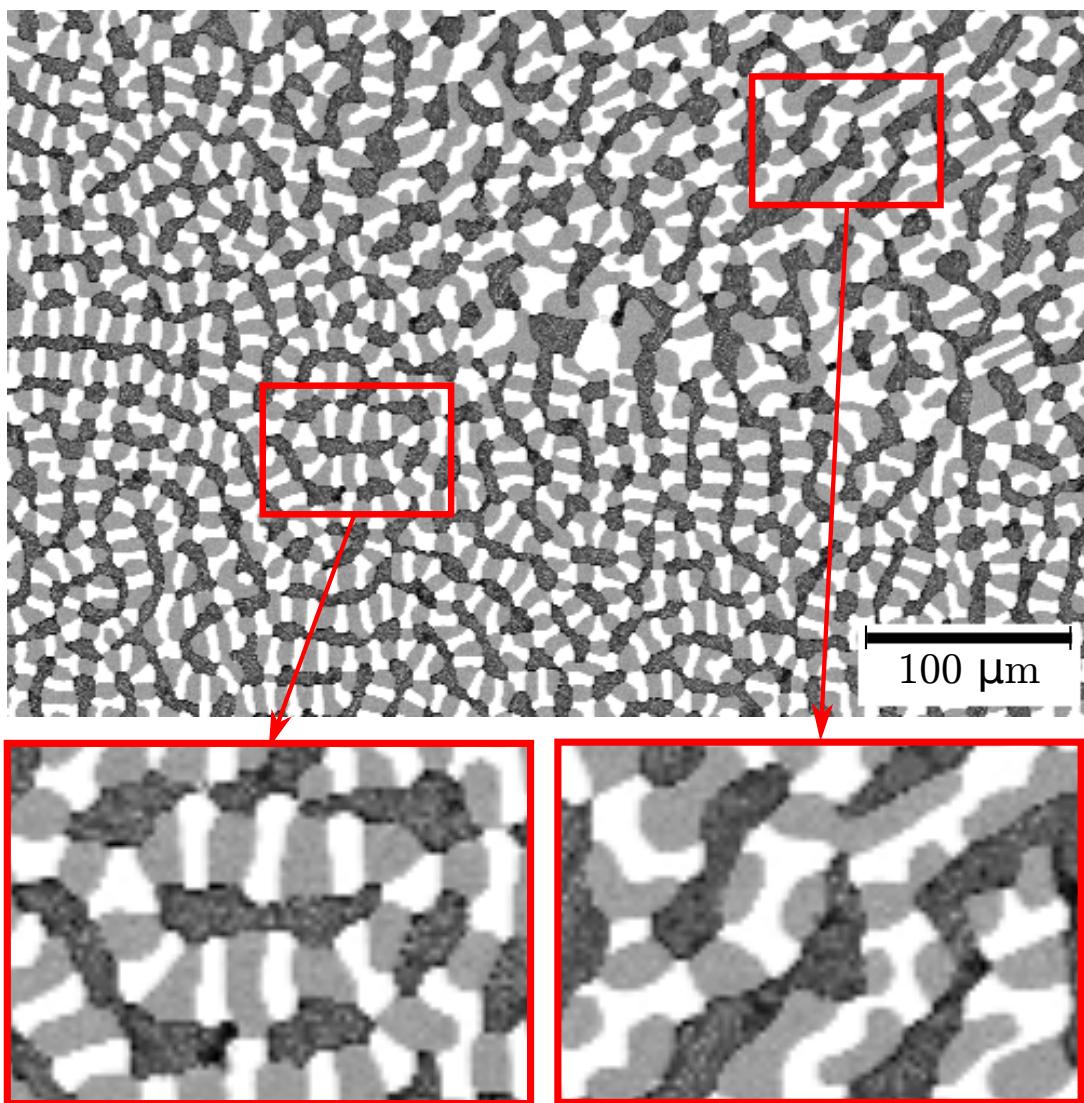


Abbildung 8.23.: Experimentelles Schliffbild von gerichtet erstarrtem, ternären eutektischem Al-Ag-Cu. Die Probe ist mit einer Geschwindigkeit von $0.32 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von 2.8 K/mm erstarrt. Im oberen rechten Teil bilden sich Tatzenstrukturen und im unteren linken Teil Kettenstrukturen, die beispielhaft im unteren Teil des Bildes vergrößert sind. Das Experiment und die Auswertung wurden von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Köln durchgeführt. Die Abbildung basiert auf einer Darstellung in [69].

und die anderen beiden werden um jeweils $\pm 0.5\%$ und $\pm 1\%$ verändert. Wie in der Vergrößerung der Liquidusprojektion in Abb. 8.24 zu sehen, sind die Veränderungen um $\pm 0.5\%$ mit den Kleinbuchstaben a-f und die Variationen um $\pm 1\%$ mit den Großbuchstaben A-F gekennzeichnet. Die Ergebnisse der Simulationen nicht-eutektischer Zusammensetzungen sind teilweise ebenfalls in [69] publiziert. Es wäre zwar auch möglich die Gibbs-Energien systematisch anzupassen um damit unterschiedliche Gleichgewichtskonzentrationen und daraus folgend

unterschiedliche Phasenfraktionen zu erhalten, wie in Abschnitt 7.1 für idealisierte Systeme gezeigt, allerdings werden dabei die Gibbs-Thomson-Koeffizienten verändert. Dies würde einen Vergleich der Ergebnisse miteinander erschweren und ist zusätzlich nur in Simulationen und nicht in Experimenten möglich.

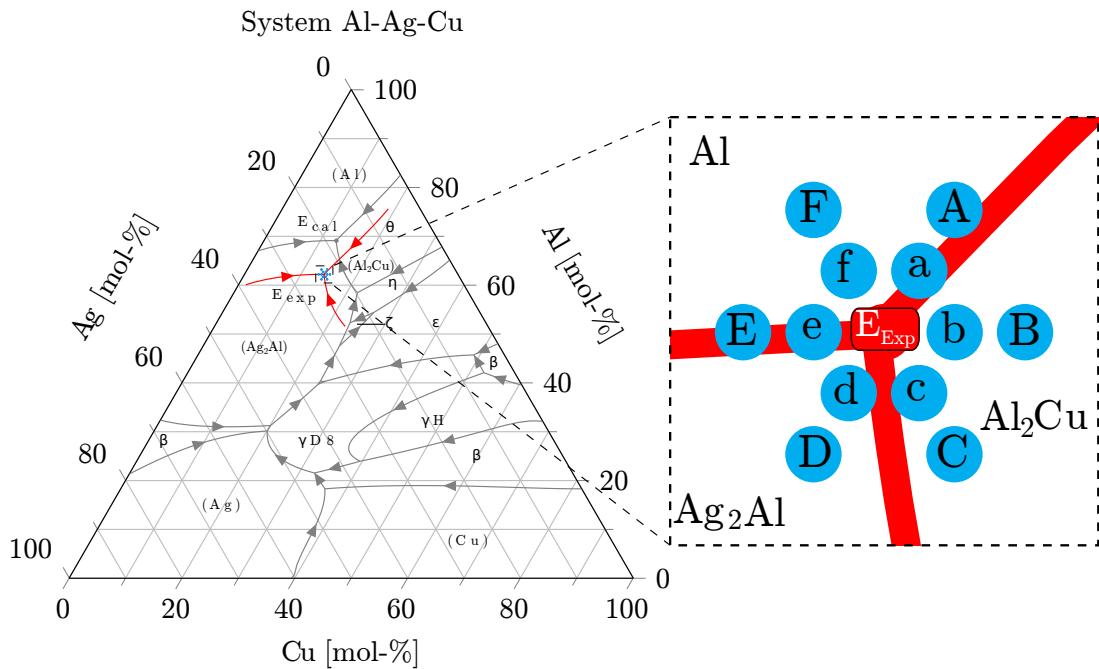


Abbildung 8.24.: Mit grauen Linien ist die Liquidusprojektion des ternären eutektischen Systems Al-Ag-Cu, basierend auf [30, 31], dargestellt. Der angepasste ternäre eutektische Punkt des Systems EXP ist in rot abgebildet. Rechts neben der Liquidusprojektion ist eine Vergrößerung der ternären eutektischen Region zu sehen aus der die simulierten Konzentrationen a-f, A-F und E_{Exp} deutlich werden. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [69].

Alle quantitativ ausgewerteten Simulationen dieses Abschnittes wurden mit einer Basis-Größe von 800×800 Voxel-Zellen durchgeführt, um statistisch invariante Gebiete zu erhalten. Um ausgebildete Mikrostrukturen zu erhalten, liefen die Rechnungen für 3 Millionen Zeitschritte mit 11 200 CPUs für ca. 12 Stunden auf dem SuperMUC-Cluster des Leibniz Rechenzentrums München, was in einer Wachstumshöhe von ungefähr 6 300 Zellen resultiert.

Die entstehenden Mikrostrukturen in Schnitten senkrecht zur Erstarrungsrichtung in der Nähe der Wachstumsfronten sind in Abb. 8.25 zu sehen. Die Simulationen der verschiedenen Konzentrationen der Schmelze sind in ihrer Anordnung um den ternären eutektischen Punkt E_{Exp} abgebildet. In Abhängigkeit von der Konzentration der Schmelze entwickeln sich unterschiedliche Muster der drei Festphasen.

Wie erwartet, führen größere Abweichungen in c_{liq} von E_{Exp} zu stärker ausgeprägten Unterschieden in den entstehenden Mustern. Bei einer noch größeren Abweichung kann zweiphasiges Wachstum von Fasern und Lamellen, eingebettet in eine Matrix, auftreten. Dies kann beispielsweise für die Simulationen mit $\pm 2\%$ in Abb. 8.26 beobachtet werden. In Abb. 8.26

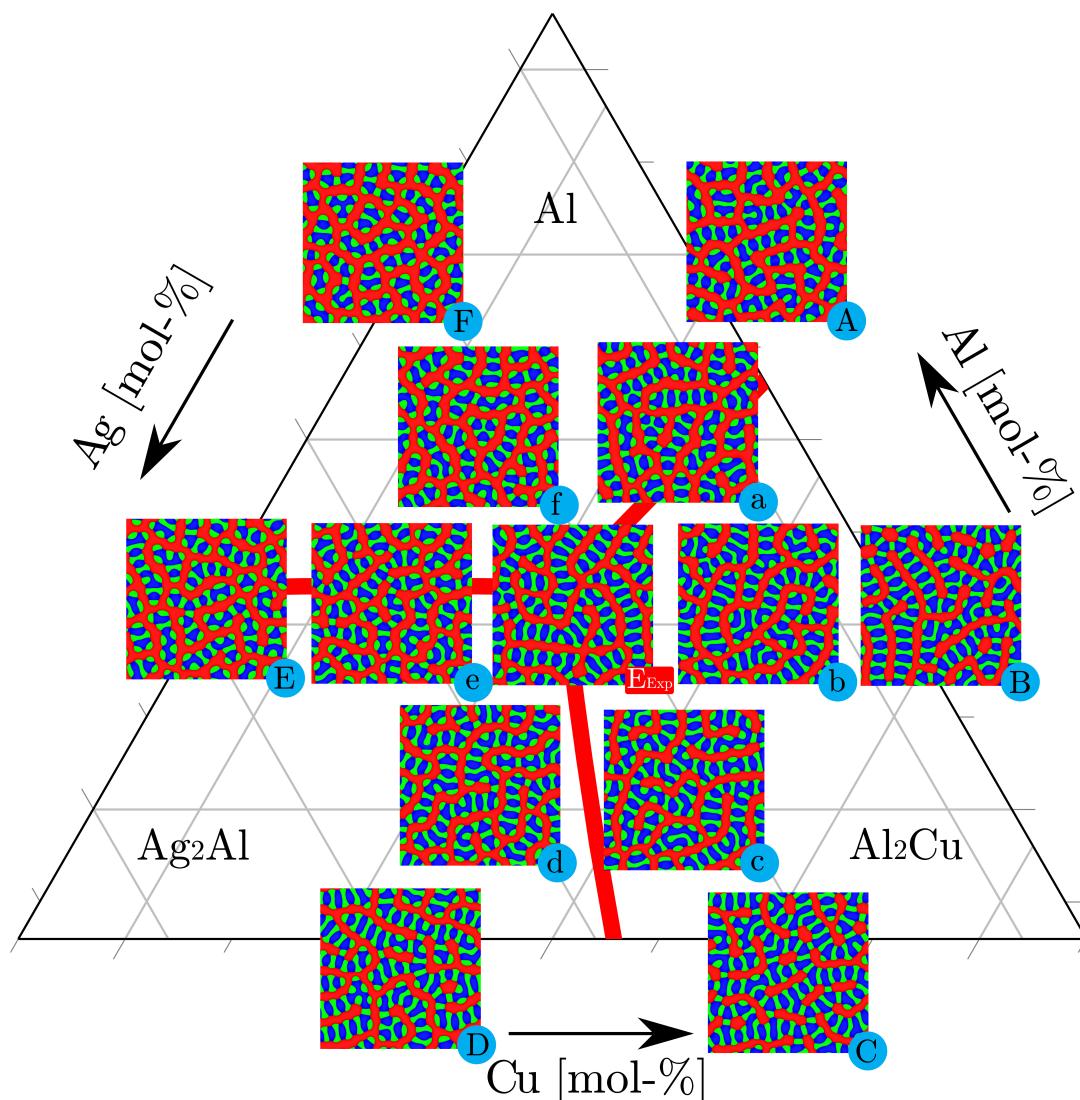


Abbildung 8.25.: Die Erstarrungsfronten nach 3 Millionen Zeitschritten mit verschiedenen Konzentrationen der Schmelze und ihre Anordnung um den ternären eutektischen Punkt E_{Exp} . Eine Konzentration wird konstant gehalten und die anderen beiden werden um jeweils $\pm 0.5\%$ (a-f) und $\pm 1\%$ (A-F) variiert. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [69].

sind Mikrostrukturen in Schnitten senkrecht zur Erstarrungsrichtung in der Nähe der Wachstumsfronten nach 3 Millionen Zeitschritten für eine Basis-Größe von 200×200 Voxel-Zellen dargestellt. Die Konzentrationen der Simulationen mit $\pm 0.5\%$ und $\pm 1\%$ entsprechen den Zusammensetzungen der Schmelzen a-f und A-F aus Abb. 8.24 und Abb. 8.25. Die Simulationen mit $\pm 2\%$ sind die Fortsetzung der Variationen. Aus Gründen der Rechenzeit wurden die Simulationen mit $\pm 2\%$ nur für eine Basis-Größe von 200×200 Voxel-Zellen durchgeführt und im Folgenden wird, aufgrund der kleinen Gebietsgrößen, auf eine weitere quantitative Auswertung verzichtet.

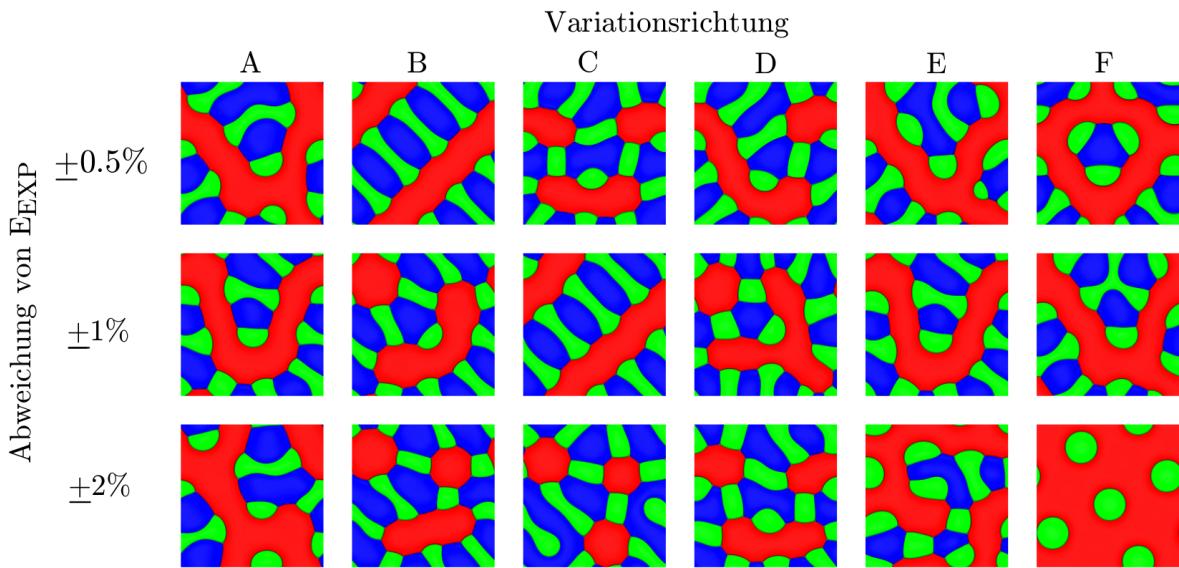


Abbildung 8.26.: Die Erstarrungsfronten von Simulationen mit der Basis-Größe 200×200 nach 3 Millionen Zeitschritten mit verschiedenen Konzentrationen der Schmelze. Die Konzentrationen der Simulationen mit $\pm 0.5\%$ und $\pm 1\%$ entsprechen den Zusammensetzungen der Schmelzen a-f und A-F aus Abb. 8.24 und Abb. 8.25. Die Simulationen mit $\pm 2\%$ sind die Fortsetzung der Variationen.

Um die visuelle Beobachtung einer Musterveränderung zu quantifizieren, werden die Phasenfraktionen und ihre relative Abweichung von E_{Exp} (siehe Tabelle 8.6) sowie die Nächste-Nachbarn-Statistiken von Al_2Cu um Ag_2Al (siehe Abb. 8.27(a)) und andersherum (siehe Abb. 8.27(b)) der Simulationen mit der Basis-Größe 800×800 Voxel-Zellen aus Abb. 8.25 genutzt. Zur Verbesserung der Übersichtlichkeit liegt der Fokus bei der quantitativen Analyse weiterhin auf den Simulationsergebnissen mit der Abweichung $\pm 1\%$ von E_{Exp} (A-F), da alle beobachteten Ergebnisse auch, für die entsprechenden Simulationen a-f, qualitativ gültig sind.

Bei der Simulation mit der ternären eutektischen Konzentration bei E_{Exp} ergeben sich Phasenfraktionen von 35%, 31% und 34% für Al, Ag_2Al und Al_2Cu . Dies ist in Übereinstimmung mit dem Phasendiagramm, das sich aus den Gibbs-Energien in Tabelle 8.2 berechnen lässt. In den Schnittbildern formen sich Kettenstrukturen von Al_2Cu - und Ag_2Al -Fasern, die in eine Al-Matrix eingebettet sind, ähnlich zu den Strukturen im unteren linken Bereich des Schliffbildes in Abb. 8.23. In der Nächste-Nachbarn-Statistik in Abb. 8.27 resultiert dies in zwei benachbarten Fasern für Ag_2Al um Al_2Cu und umgekehrt.

Bei den Simulationen mit den Zusammensetzungen A, E und F führt der Anstieg des Al-Phasanteils zu einer Verringerung der Phasenfraktionen von Al_2Cu und Ag_2Al . In der daraus folgenden, stärker ausgeprägten Matrixphase entstehen kürzere Ketten, sogenannte Inselstrukturen [38] und Tatzenstrukturen [21]. Diese Art von Inselstrukturen ist auch in Simulationen mit dem Datensatz CAL aufgetreten.

Die Tatzenstrukturen treten in den Simulationen als Ag_2Al -Fasern um Al_2Cu -Lamellen auf und führen zu drei und mehr Ag_2Al -Nachbarn um Al_2Cu -Lamellen, wie in der Statistik in

Abb. 8.27(b) gezeigt. Die Kettenenden werden durch den Anteil von einem Nachbarn in Abb. 8.27(a) reflektiert. Die beobachteten Musterveränderungen in den Simulationen A und F sind verursacht durch einen Anstieg der Al-Konzentration in der Schmelze. Bei Simulation E dagegen tritt eine Verringerung von Cu und ein Anstieg von Ag auf. Dies führt, bedingt durch die verschiedenen Anteile von Al in den Phasen Ag_2Al und Al_2Cu , zu einer Anreicherung mit Al in der Schmelze.

Eine Veränderung der Konzentrationen in Richtung der Al_2Cu -Phase, wie für die Simulationen B und C durchgeführt, hat einen größeren Anteil dieser Phase zur Folge und dementsprechend stärker vernetzte Ketten und Ringstrukturen, wie sie auch in Experimenten auftreten (siehe Abb. 8.5 (c)). Die Verzweigungen der Ketten, die aus Al_2Cu -Fasern bestehen, äußern sich als drei Nachbarn von Ag_2Al in Abb. 8.27(b). Die Kettenstrukturen werden ähnlich wie bei der Simulation an E_{Exp} durch einen Anteil von 77% in B und 80% in C für zwei Al_2Cu -Nachbarn um Ag_2Al in den Nächste-Nachbarn-Statistiken von Abb. 8.27(a) widergespiegelt. Ein größerer Anteil von Ag und eine konstante Konzentration von Cu in D resultieren in einem größerem Anteil der intermetallischen Phase Ag_2Al . Da keine ausgeprägte Musteränderung auftritt, sind sowohl die Nächste-Nachbarn-Statistiken als auch die entstehenden Kettenstrukturen ähnlich wie in der Simulation bei E_{Exp} .

Auch bei den Simulationen mit einem konstanten Anteil von Al in der Schmelze ändert sich die Phasenfraktion der Al-Phase, wie in den Simulationen B und E beobachtet werden kann. Daher gestaltet sich, bedingt durch die verschiedenen intermetallischen Zusammensetzungen der Festphasen und ihre Interaktionen, eine direkte Vorhersage der entstehenden Muster nur basierend auf der Konzentration der Schmelze extrem schwierig. Eine Möglichkeit diese Herausforderung zu lösen, bieten großskalige Phasenfeldsimulationen, wie durch die vorgestellten Ergebnisse gezeigt. Die beobachteten Tendenzen für die Simulationen A-F treten weniger ausgeprägt ebenfalls für die korrespondierenden Simulationen a-f auf.

Tabelle 8.6.: Phasenanteile der Simulationen A-F und E_{Exp} aus Abb. 8.26 mit unterschiedlichen Konzentrationen der Schmelze. Die relative Abweichung ist auf die Ergebnisse der Simulation an der Konzentration des ternären eutektischen Punktes E_{Exp} bezogen.

Simulation	Al	rel. Abweichung	Ag_2Al	rel. Abweichung	Al_2Cu	rel. Abweichung
E_{Exp}	0.350		0.309		0.341	
A	0.407	0.16	0.264	-0.14	0.329	-0.03
B	0.324	-0.08	0.292	-0.05	0.384	0.13
C	0.286	-0.18	0.330	0.07	0.384	0.13
D	0.325	-0.07	0.343	0.11	0.332	-0.03
E	0.405	0.16	0.316	0.02	0.279	-0.18
F	0.445	0.27	0.277	-0.1	0.278	-0.18

Die Simulationsergebnisse zeigen, dass selbst eine Variation der Zusammensetzung der Schmelze im Bereich von $\pm 0.5\%$ und $\pm 1\%$ um die Konzentration des ternären eutektischen Punktes zu einer sowohl visuellen als auch statistisch messbaren Musteränderung führt. Die dabei entstehenden Strukturen sind stabile Muster, wie durch die in Abb. 8.28 dargestellten dreidimensionalen Mikrostrukturen der Simulationen A-F deutlich wird. Zusätzlich zur 3D-Darstellung

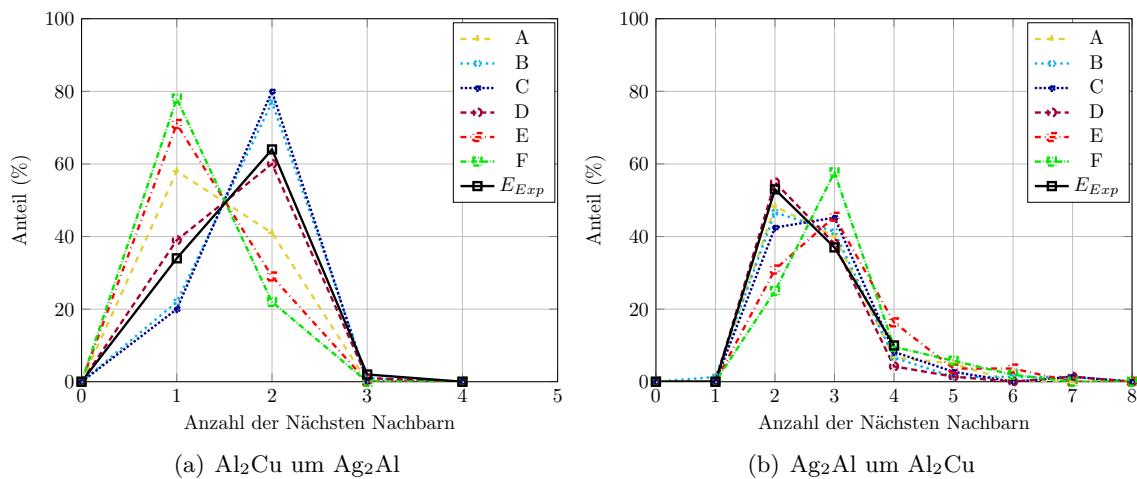


Abbildung 8.27.: Nächste-Nachbarn-Statistiken der Phase Al_2Cu um Ag_2Al (a) und andersherum (b). Die Abbildung basiert auf einem Diagramm in [69].

sind 2D-Schnitte nach ein und zwei Millionen Zeitschritten abgebildet. Beim Vergleich der Ergebnisse nach ein, zwei und drei Millionen Zeitschritten wird deutlich, dass zunächst noch kleine Änderungen in der Mikrostruktur auftreten, diese mit der Zeit aber geringer werden, sodass sich am Ende der Simulationen die Phasenanordnungen und die Formen der Fasern in einem stationärem Zustand ausgebildet haben.

8.6.2. Erklärungsansatz zum Auftreten komplexer Musteranordnungen in Experimenten

In gerichtet erstarrten, ternären eutektischen Systemen, wie z. B. Al-Ag-Cu, bilden sich eine Vielzahl unterschiedlicher Muster [14, 15, 21] für gleiche aufgeprägte Prozessbedingungen aus. Dies kann in den experimentellen Schliffbildern in Abb. 8.23 und in Abb. 8.29 beobachtet werden. Beispielsweise treten im Schliffbild von Al-Ag-Cu in Abb. 8.29 parallel zur Erstarrungsrichtung drei verschiedene Regionen mit unterschiedlichen Farben auf. Durch die Vergrößerungen auf der rechten Seite wird deutlich, dass die unterschiedlichen Farben in den Regionen I-III das Resultat verschiedener Phasenfraktionen und Muster sind. Das experimentelle Schliffbild stammt von Dr. A. Dennstedt vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Köln, Deutschland und ist ebenfalls in [69] publiziert. In dieser Publikation sind auch Ergebnisse dieses Abschnittes bereits veröffentlicht.

Um das Auftreten der verschiedenen Regionen I-III zu analysieren, werden deren Muster quantitativ mit den Simulationsergebnissen aus Abschnitt 8.6.1 verglichen. Dazu sind in Tabelle 8.7 die Phasenfraktionen für die Simulation an E_{Exp} sowie die Werte der drei Bereiche und ihre Abweichung von E_{Exp} aufgeführt. In allen drei Regionen I-III entstehen Variationen von Kettenstrukturen, was sowohl visuell als auch mit Nächste-Nachbarn-Statistiken beobachtet werden kann.

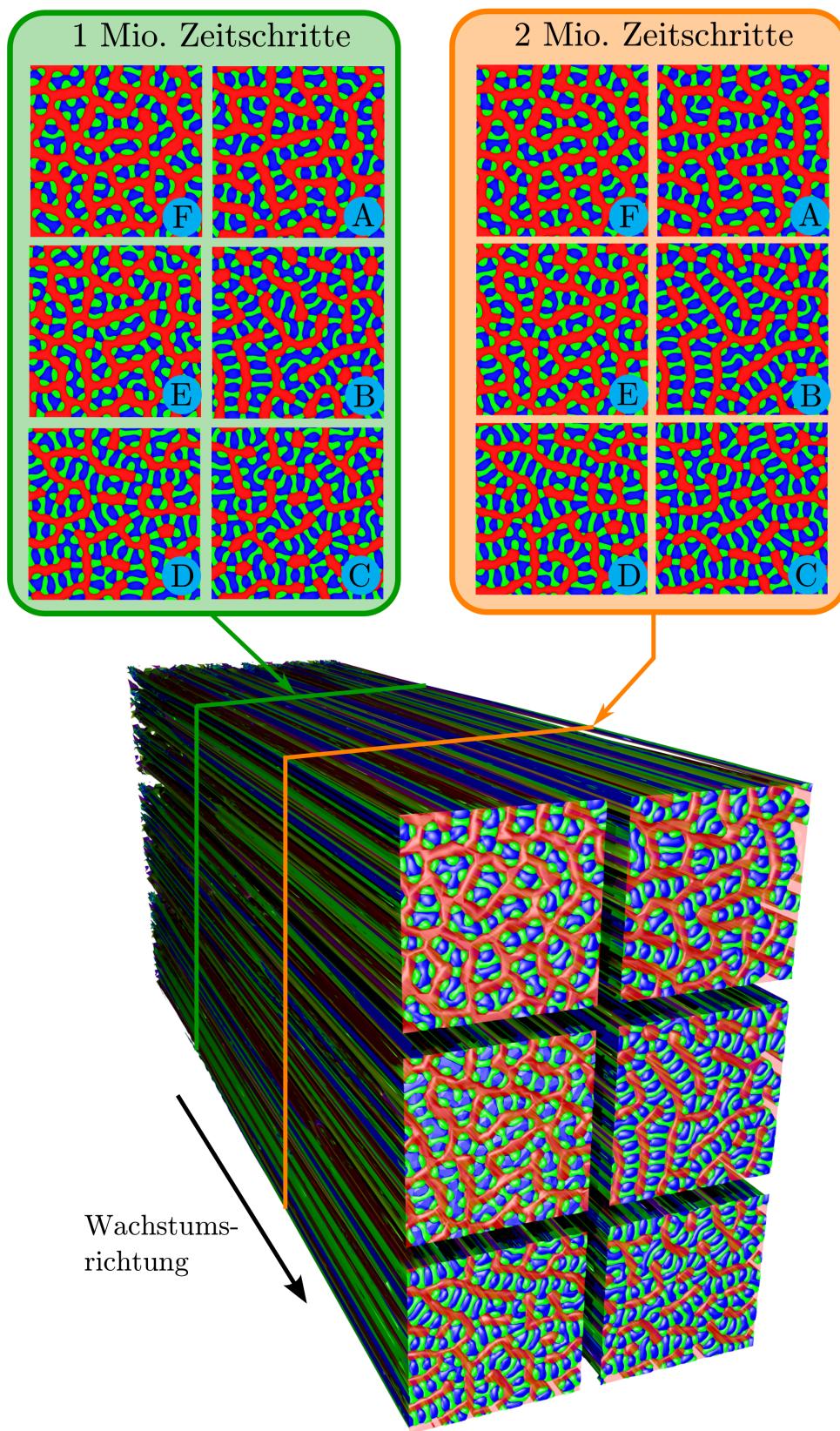


Abbildung 8.28.: Darstellung der dreidimensionalen Mikrostruktur der drei Festphasen der Simulationen A-F. Darunter sind die Erstarrungsfronten nach 1 und 2 Millionen Zeitschritten abgebildet. Diese Abbildung basiert auf einer Darstellung in [69].

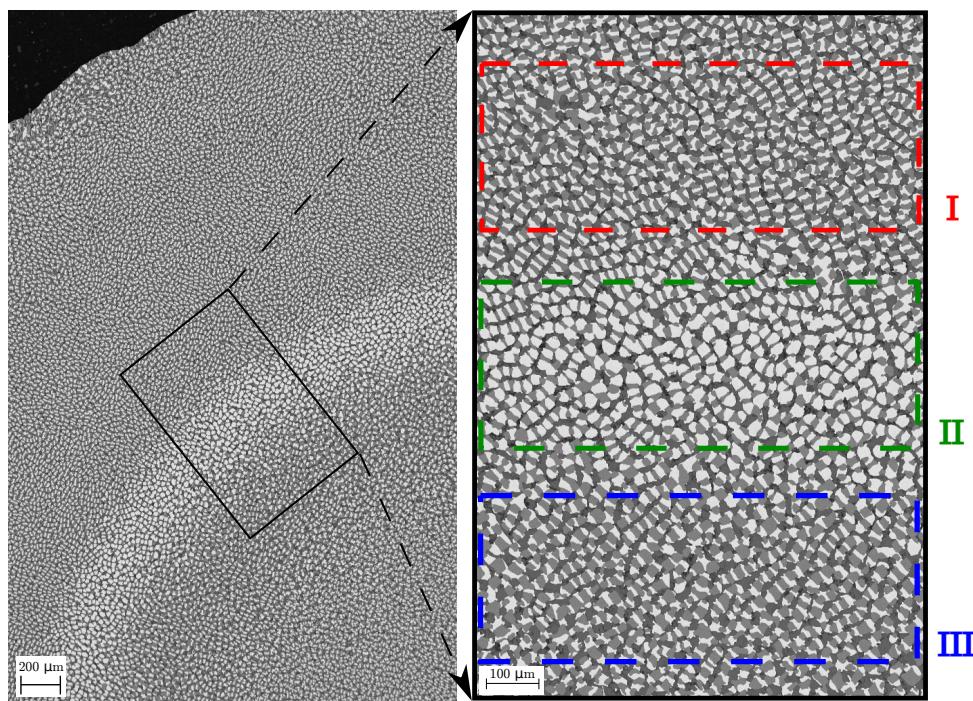


Abbildung 8.29.: Experimentelles Schliffbild parallel zur Erstarrungsfront von gerichtet erstarrtem Al-Ag-Cu. Die Probe ist mit einer Geschwindigkeit von $0.11 \mu\text{m}/\text{s}$ und einem Temperaturgradienten von 2.2 K/mm erstarrt. Laut Messung entspricht die Zusammensetzung der Gesamtprobe der ternären eutektischen Zusammensetzung. Rechts sind vergrößerte Ausschnitte der Regionen I-III mit den drei unterschiedlichen Mustern abgebildet. Die Abbildung basiert auf einer Darstellung in [69].

Die Phasenfraktionen von Region I unterscheiden sich für alle Phasen um weniger als 1% von den simulierten Ergebnissen in E_{Exp} . Aus den Nächste-Nachbarn-Statistiken von Al_2Cu um Ag_2Al und andersherum in Abb. 8.30 wird deutlich, dass Region I ein Maximum bei zwei Nachbarn hat, ebenso wie E_{Exp} . Aufgrund der Ähnlichkeiten in den entstehenden Mikrostrukturen und den beiden Statistiken zeigt sich eine relativ gute Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen von Region I und der Simulation bei E_{Exp} . Für Region II zeigen sich ähnliche Tendenzen wie für die Simulation bei der Zusammensetzung D, welche eine Erhöhung des Ag-Anteils in der Schmelze abbildet. Die Unterschiede zwischen Region II des Experiments und der Simulation bei E_{Exp} sind dabei allerdings stärker ausgeprägt als in D. Für Region III zeigen sich in den Phasenfraktionen die größten Übereinstimmungen mit der Simulation bei der Zusammensetzung B.

Um die beobachteten Variationen der Mikrostruktur weiter zu quantifizieren, wird eine Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen [309, 333–336, 338, 343, 362, 363], wie in Abschnitt 5.4 beschrieben, auf die Simulationen A-F und E_{Exp} sowie auf die experimentellen Schliffbilder der Regionen I-III angewandt. Dazu wird das gleiche Verfahren wie in Abschnitt 8.3 und [70] genutzt. Die Ergebnisse der Hauptkomponentenanalyse in den Ebenen der ersten drei PC-Richtungen mit der höchsten Varianz sind in Abb. 8.31 abgebildet. Dabei ist in Abb. 8.31 das Ergebnis als dreidimensionaler Plot gezeigt und darunter die Projektionen

Tabelle 8.7.: Phasenfraktionen der Simulation bei E_{Exp} und die verschiedenen Regionen von Abb. 8.29 I-III sowie ihre relative Abweichung von E_{Exp} .

Simulation	Al	rel. Abweichung	Ag_2Al	rel. Abweichung	Al_2Cu	rel. Abweichung
E_{Exp}	0.350		0.309		0.341	
I	0.347	-0.01	0.303	-0.02	0.35	0.03
II	0.306	-0.13	0.479	0.55	0.215	-0.37
III	0.348	-0.01	0.273	-0.12	0.379	0.11

in die PC1-PC2- und PC1-PC3-Ebene. Die Anordnung der Simulationen A-F um E_{Exp} mit den verschiedenen Zusammensetzungen der Schmelze wird auch in den Projektionen widergespiegelt. Das heißt, die Mustervariation und die Änderung der Phasenfraktionen werden in der Hauptkomponentenanalyse abgebildet. Ähnlich wie die visuellen Beobachtungen, die gemessenen Phasenfraktionen und die Nächste-Nachbarn-Statistiken zeigt die Hauptkomponentenanalyse für Region I durch ihre relative Position die größte Übereinstimmung mit der Simulation bei E_{Exp} . Sowohl E_{Exp} wie auch Region I sind im PC-Raum von den Simulationen A-F eingerahmt. Für die Regionen II und III zeigen die PCA-Ergebnisse ähnliche Tendenzen wie die Nächste-Nachbarn-Statistiken und die Phasenfraktionen. Aus Sicht von E_{Exp} befindet sich die Projektion der Region II in Richtung der Simulationen D und E und die Projektion von Region III in Richtung der Simulationen B und C.

Anhand der durch verschiedene statistische Methoden und dem Vergleich mit großskaligen Phasenfeldsimulationen unterschiedlicher Schmelzkonzentration gezeigten Tendenzen in den Regionen I-III kann geschlussfolgert werden, dass die Variationen der Kettenmuster von lokalen Konzentrationsunterschieden abhängen. Ein Grund für diese lokalen Konzentrationsabweichungen, z. B. in Abb. 8.29, kann schwerkraftinduzierte Segregation augrund der unterschiedlichen Dichten der chemischen Elemente in der Schmelze [26, 27] sein. Silber hat bei 293 K eine Dichte von 10.5 g/cm^3 , Kupfer von 8.9 g/cm^3 und Aluminium von 2.7 g/cm^3 [364]. Es wird daher vermutet, dass diese Dichteunterschiede zu Konvektionszellen in der Schmelze führen. Für eine experimentelle Untersuchung des Einflusses schwerkraftinduzierter Segregation auf die Mikrostrukturentwicklung sind Schwerelosigkeitsexperimente notwendig [365]. Derartige experimentelle Untersuchungen sind als Teil des SETA-Projektes (engl. Solidification along a Eutectic path in Ternary Alloys) [28, 29] auf der internationalen Raumstation ISS (engl. International Space Station) geplant. Für eine weitergehende simulative Untersuchung des Einflusses schwerkraftinduzierter Segregation auf die Mikrostrukturentwicklung ist die Einbindung von Konvektion im Phasenfeldmodell notwendig, welche allerdings mit einem hohen rechentechnischen Aufwand verbunden ist [366, 367].

8.6.3. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Abschnitt wurde der Einfluss unterschiedlicher Konzentrationen der Schmelze auf die entstehenden Muster bei der gerichteten Erstarrung des ternären eutektischen Systems Al-Ag-Cu untersucht. Dazu wurde die Konzentration der Schmelze in großskaligen Phasenfeldsimulationen systematisch um den ternären eutektischen Punkt E_{Exp} im Bereich

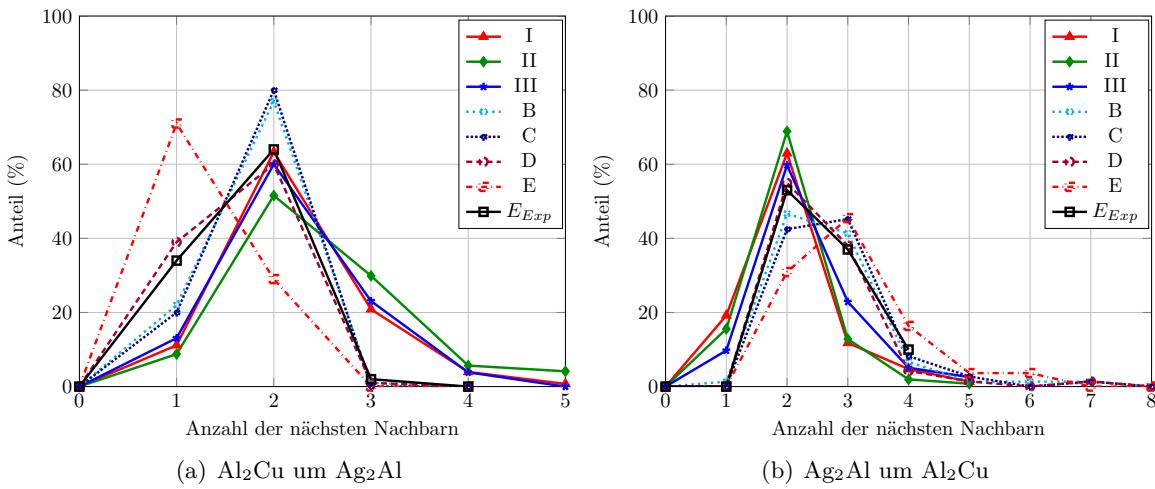


Abbildung 8.30.: Nächste-Nachbarn-Statistiken der Phasen Al_2Cu um Ag_2Al (a) und andersherum (b) für die Regionen I-III des Schliffbildes in Abb. 8.29 und ausgewählte Simulationen. Die Abbildung basiert auf einem Diagramm in [69].

von $\pm 0.5\%$ und $\pm 1\%$ variiert. Für die quantitative Analyse der Muster wurden Nächste-Nachbarn-Statistiken, die Phasenfraktionen und eine Hauptkomponentenanalyse, basierend auf Zweipunktkorrelationen, wie in Kapitel 5 beschrieben, genutzt.

Aus den visuellen und statistischen Analysen ergeben sich folgende Hauptergebnisse:

- (i) Bereits Variationen im Bereich von $\pm 1\%$ führen zu unterschiedlichen Mustern in der entstehenden Mikrostruktur. Dabei zeigen sich für die untersuchten Konzentrationen mit $\pm 1\%$ Veränderung der Schmelzkonzentration vom ternären eutektischen Punkt ähnliche, aber verstärkte Tendenzen wie bei den entsprechenden Simulationen mit $\pm 0.5\%$ Abweichung. Stärkere Abweichungen von $\pm 2\%$ können zum Überwachsen einzelner Phasen führen, wie in den 200×200 Voxel-Zellen Simulationen gezeigt.
- (ii) Trotz der verschiedenen Zusammensetzungen der Schmelze haben sich alle Simulationen zu stationären Zuständen der unterschiedlichen Muster entwickelt.
- (iii) Die Ergebnisse der Hauptkomponentenanalyse spiegeln die Anordnung der Simulationen mit einer Variation der Schmelze um den ternären eutektischen Punkt wider und ermöglichen es daher einen quantitativen Zusammenhang zwischen den verschiedenen Schnittbildern aufzuzeigen.
- (iv) Im analysierten experimentellen Schliffbild in Abb. 8.29 zeigen sich die gleichen Tendenzen, sowohl in den entstehenden Mustern wie auch in den Phasenfraktionen, wie in den Simulationen mit unterschiedlichen Konzentrationen der Schmelze. Daraus kann geschlussfolgert werden, dass lokale Unterschiede in der Konzentration der Schmelze zu verschiedenen Mikrostrukturmustern innerhalb des gleichen Schliffbildes führen können wie sie auch experimentell beobachtet werden.

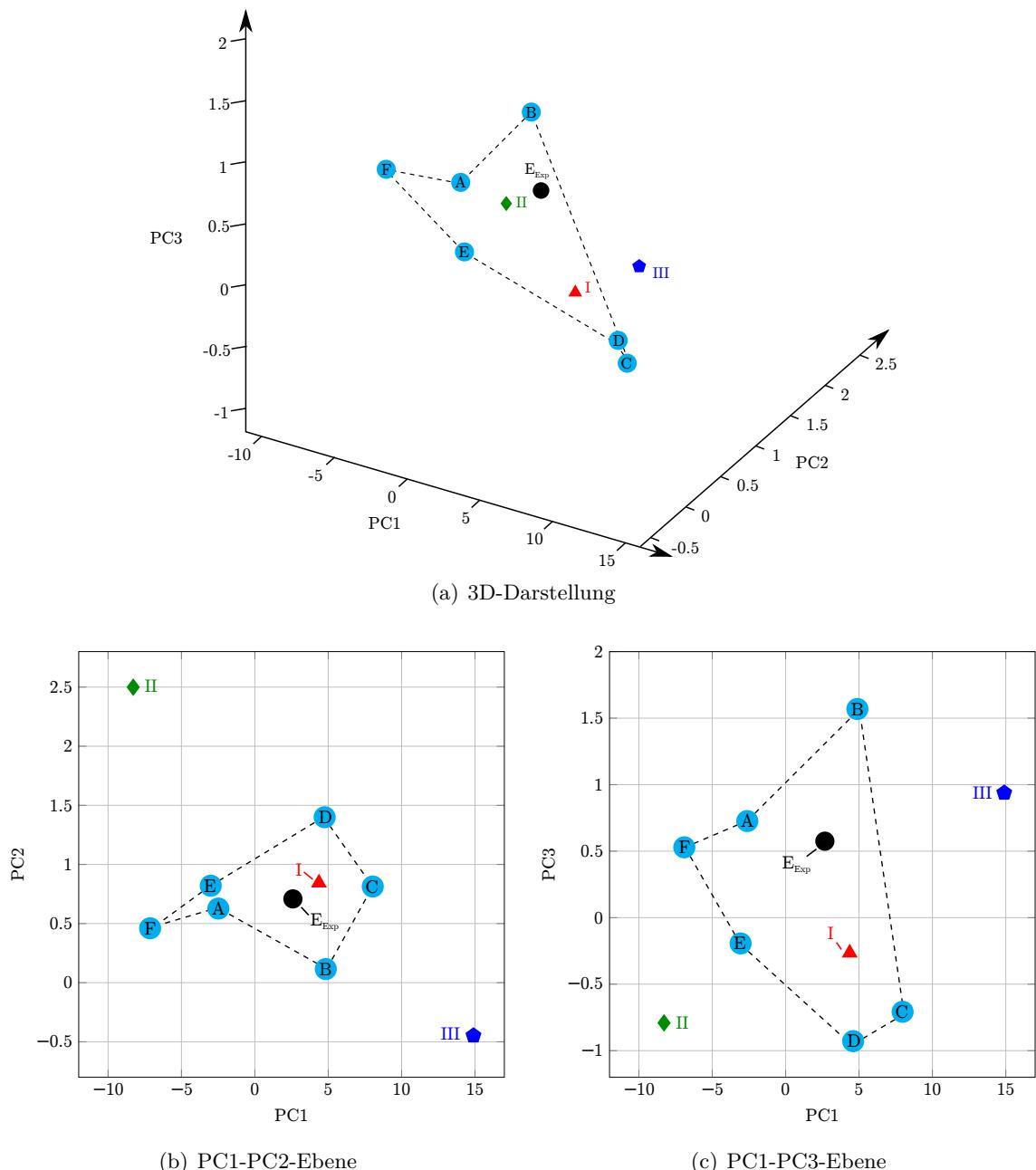


Abbildung 8.31.: Projektion der Simulationen E_{Exp} und A-F sowie die drei Regionen des experimentellen Schliffbildes I-III in den Raum der ersten drei PC-Werte und zusätzlich die Projektion in die PC1-PC2- sowie PC1-PC3-Ebene.

8.7. Vorhersage der Mikrostrukturentwicklung in Abhangigkeit von Prozessgroen mit der Hauptkomponentenanalyse

Fur eine effektivere Materialentwicklung und die Bestimmung der notwendigen Prozessparameter um angestrebte mechanische Eigenschaften zu erhalten, ist eine direkte Verknupfung der Prozessgroen, der entstehenden Mikrostruktur und der makroskopischen mechanischen Eigenschaften (engl. process-structure-property linkage, PSP) [336, 337, 340, 368–377] wunschenswert. Ein Beispiel einer solchen direkten Verknupfung von Prozessparametern und der entstehenden Mikrostruktur in Phasenfeldsimulationen wird von Yabansu et al. in [271] durchgefuhrt. Zur Etablierung einer direkten Verknupfung fur das System Al-Ag-Cu wurden insgesamt 37 Simulationen mit verschiedenen Konzentrationen der Schmelze und verschiedenen Geschwindigkeiten des Temperaturgradienten durchgefuhrt. Die Konzentration von Al wird konstant gehalten und die Konzentration von Ag und dementsprechend auch von Cu wird systematisch variiert. Die Basis-Groe der Simulationen betragt 800×800 Voxel-Zellen, um die Simulation statistischer Volumenelemente sicherzustellen. Eine Uberblick der verwendeten Konzentrationen und Geschwindigkeiten ist in Tabelle 8.8 gegeben. Alle weiteren Parameter sind die gleichen wie im Parametersatz EXP.

Ahnlich wie in Abschnitt 8.3 beschrieben, wird eine Hauptkomponentenanalyse, basierend auf Zweipunktkorrelationen, auf die Schnittbilder parallel zur Erstarrungsfront fur verschiedene Erstarrungshohen durchgefuhrt. Die Projektion der Schnittbilder senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Nahe der Erstarrungsfront am Ende der Simulationen in die PC1- und PC2-Ebene sowie in die PC1- und PC3-Ebene, ist in Abb. 8.32 dargestellt. Zusatzlich ist in Abb. 8.32(a) die Geschwindigkeit und in Abb. 8.32(b) die Konzentration von Ag in der Schmelze durch die Farbe der Punkte gekennzeichnet. Die Abbildung basiert auf einer Darstellung in [271]. In der Projektion ist sowohl der Einfluss der Geschwindigkeit als auch der Einfluss der Konzentration durch die relative Position der Ergebnisse reflektiert.

Auf diese Ergebnisse wird eine Ausgleichsrechnung mit einem Legendre-Polynom-Ansatz der Form

$$\alpha_i = \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^M A_{i,n,m} P_n(v^*) P_m(c^*) \quad (8.1)$$

durchgefuhrt. Dabei beschreibt α_i den i -ten PC-Wert, $A_{i,n,m}$ die Koeffizienten des Ansatzes und $P_n(v^*)$ und $P_m(c^*)$ die Legendre-Polynome vom Grad n bzw. m . Die Parameter v^* und c^* sind die normalisierte Geschwindigkeit und die normalisierte Konzentration von Ag in der Schmelze, mit

$$v^* = \frac{2v - v_{min} - v_{max}}{v_{max} - v_{min}} \quad \text{und} \quad c^* = \frac{2c - c_{min} - c_{max}}{c_{max} - c_{min}} \quad (8.2)$$

in Abhangigkeit von den Minimal- und Maximalwerten von v und c im betrachteten Datensatz. Die Koeffizienten $A_{i,n,m}$ werden mit der Methode der kleinsten Quadrate bestimmt.

Wie in [271] gezeigt, lassen sich mit diesem Vorgehen die Zweipunktkorrelationen der Simulationen per „Leave-One-Out“-Kreuzvalidierung (LOOCV) mit einer maximalen Abweichung von 6.296 in der euklidischen Metrik der ersten drei PC-Werte vorhersagen. Weiterhin konnen, basierend auf dem Interpolationsansatz, die Werte in den Zwischenbereichen berechnet werden, um

8.7. Vorhersage der Mikrostrukturentwicklung in Abhangigkeit von Prozessgroen mit der Hauptkomponentenanalyse

damit die Zweipunktkorrelationen fur beliebige Werte der beiden Prozessgroen Geschwindigkeit und Konzentration von Ag innerhalb des untersuchten Intervalls vorherzusagen. Zusammen mit einer Ruckrechnung der Mikrostruktur aus den vorhergesagten Zweipunktkorrelationen und der Kopplung der Mikrostruktur mit den mechanischen Eigenschaften ist die Vorhersage der Zweipunktkorrelationen ein Schritt zur Etablierung einer PSP. Diese Entwicklungen stellen einen Beitrag im Bereich der integrierten computergestutzten Materialentwicklung (engl. integrated computational materials engineering (ICME))[4] dar und unterstutzen die Material-Genom-Initiative (engl. Materials Genome Initiative (MGI)) [1].

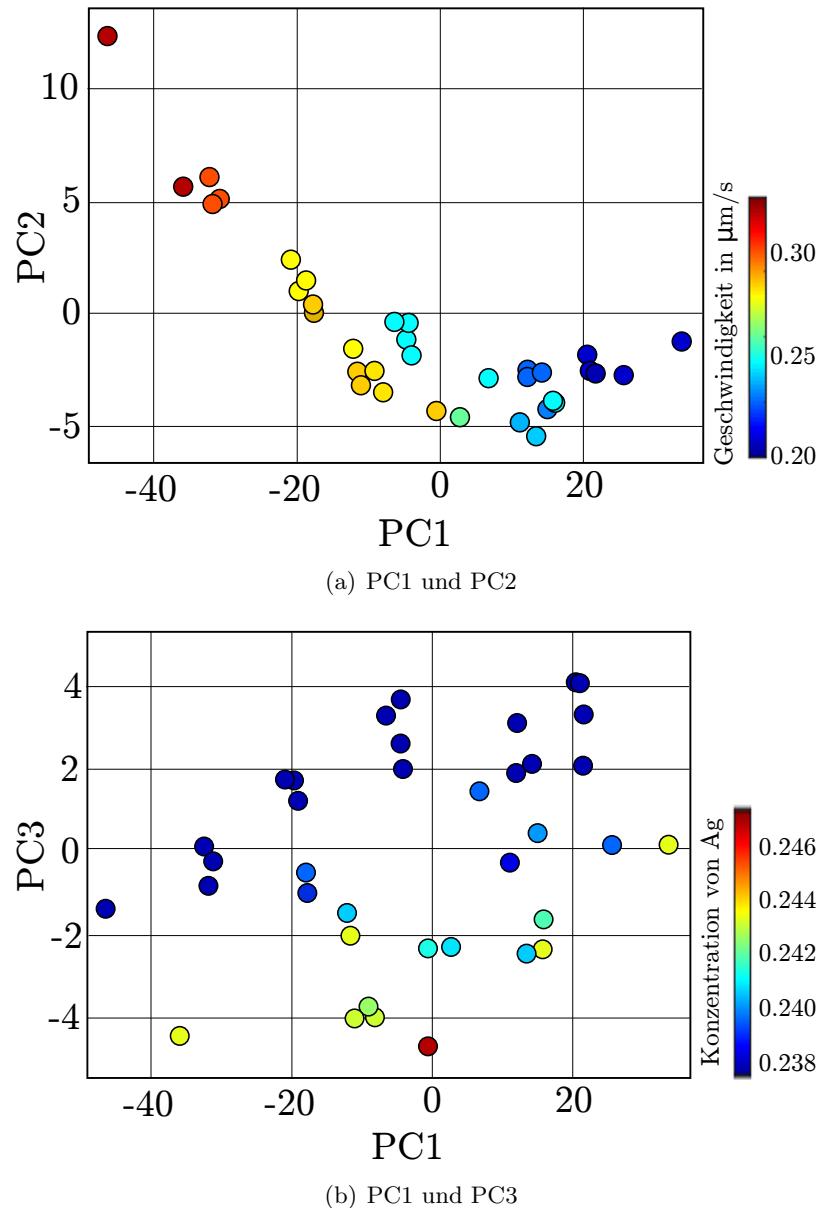


Abbildung 8.32.: Projektion der Schnittbilder senkrecht Wachstumsrichtung in der Nähe der Erstarrungsfront am Ende der Simulationen in die PC1- und PC2-Ebene sowie in die PC1- und PC3-Ebene. Die Geschwindigkeit (a) und die Konzentration von Ag in der Schmelze (b) ist mit der Farbe der Punkte gekennzeichnet. Die Abbildung basiert auf einer Darstellung in [271].

Tabelle 8.8.: Uberblick der verwendeten Konzentrationen in der Schmelze und Geschwindigkeiten fur die 37 Simulationen mit Basis-Groen von 800×800 Voxel-Zellen.

Simulation	Geschwindigkeit in $\mu m/s$	Konz. von Al	Konz. von Ag	Konz. von Cu
1	0.204	0.622	0.237	0.141
2	0.231	0.622	0.237	0.141
3	0.282	0.622	0.237	0.141
4	0.308	0.622	0.237	0.141
5	0.204	0.622	0.237	0.141
6	0.231	0.622	0.237	0.141
7	0.282	0.622	0.237	0.141
8	0.308	0.622	0.237	0.141
9	0.204	0.622	0.237	0.141
10	0.231	0.622	0.237	0.141
11	0.282	0.622	0.237	0.141
12	0.308	0.622	0.237	0.141
13	0.204	0.622	0.239	0.139
14	0.204	0.622	0.243	0.135
15	0.289	0.622	0.239	0.139
16	0.289	0.622	0.243	0.135
17	0.289	0.622	0.248	0.139
18	0.256	0.622	0.239	0.139
19	0.256	0.622	0.243	0.135
20	0.180	0.622	0.237	0.141
21	0.333	0.622	0.237	0.141
22	0.236	0.622	0.240	0.139
23	0.333	0.622	0.243	0.135
24	0.241	0.622	0.238	0.140
25	0.264	0.622	0.241	0.137
26	0.284	0.622	0.243	0.135
27	0.248	0.622	0.242	0.136
28	0.285	0.622	0.243	0.135
29	0.256	0.622	0.241	0.138
30	0.289	0.622	0.243	0.135
31	0.287	0.622	0.239	0.140
32	0.280	0.622	0.240	0.138
33	0.246	0.622	0.240	0.138
34	0.256	0.622	0.237	0.141
35	0.256	0.622	0.237	0.141
36	0.256	0.622	0.237	0.141
37	0.256	0.622	0.237	0.141

9. Fazit und Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die gerichtete Erstarrung ternärer Eutektika mit der Phasenfeldmethode untersucht. Durch die Verwendung eines hochoptimierten, massiv-parallelen Lösers war es möglich, die komplexe dreidimensionale Mikrostruktur, die während der gerichteten Erstarrung entsteht, zu simulieren. Damit wurden großskalige Simulationen mit bis zu ca. 172 000 CPUs durchgeführt.

Für die Untersuchungen wurden ein ideales System, verschiedene idealisierte Systeme und zwei Datensätze von Al-Ag-Cu verwendet. Der Fokus dieser Arbeit lag insbesondere auf der Untersuchung des gleichzeitigen Auftretens unterschiedlicher Muster in Schnitten parallel zur Erstarrungsfront bei gleichen aufgeprägten Prozessbedingungen.

Aus den durchgeföhrten Untersuchungen lassen sich folgende Haupt schlussfolgerungen ziehen:

- (i) Aufgrund der guten qualitativen und quantitativen Übereinstimmungen von Simulationen des idealen ternären eutektischen Systems und zwei verschiedenen Analytiken, sowie der qualitativen Ähnlichkeit für Al-Ag-Cu, ist das verwendete Phasenfeldmodell in der Lage die Beziehung zwischen der Wachstumsgeschwindigkeit, den lamellaren Abständen und der durchschnittlichen Frontunterkühlung korrekt vorherzusagen. Dazu wurde erstmals die Unterkühlung in dreidimensionalen Simulationen ternärer eutektischer Systeme bei verschiedenen systematisch variierten, lamellaren Abständen untersucht. Die Unterkühlung folgt dabei einem Verlauf, ähnlich dem von Jackson und Hunt [240] analytisch vorhergesagtem Zusammenhang mit einem globalen Minimum bei λ_{JH} . Mit Hilfe der Variation wurde ein Erklärungsansatz für das Auftreten bestimmter Muster, bedingt durch die Gesamtunterkühlung und die Anordnung der benachbarten Phasen, hergeleitet.
- (ii) Durch die systematische Variation der Basis-Größe konnte deren Einfluss auf die entstehenden Muster in idealen und realen Systemen gezeigt werden. Es wurde sowohl eine Maßzahl für ein ideales System hergeleitet wie auch ein Vorgehen zur Bestimmung der minimal notwendigen Gebietsgröße und der erforderlichen Anzahl an Zeitschritten für Al-Ag-Cu vorgestellt. Mit dieser Methode, der Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelationen, wurde außerdem die notwendige Gebietsgröße zum Erreichen statistischer Volumenelemente für die beiden Datensätze von Al-Ag-Cu bestimmt.
- (iii) In den auf diesen Erkenntnissen basierenden großskaligen Simulationen wurden Musteranordnungen gefunden, die auch in Experimenten beobachtet werden, die aber nicht in kleinskaligen Simulationen auftreten. Diese Anordnungen beinhalten das Entstehen von Übergangszonen verschieden ausgerichteter ternärer eutektischer Strukturen, Spiralwachstum ineinander verschlungener Fasern eingebettet in eine Matrixphase und das gleichzeitige Auftreten verschiedener Muster. Durch die systematische Variation von physikalischen Werten und Prozessparametern in den Simulationen konnte beispielsweise ein

Erklärungsansatz dafür gegeben werden, dass bestimmte Strukturen, wie das vermutete Spiralwachstum, nur relativ selten in Experimenten des Systems Al-Ag-Cu beobachtet werden.

- (iv) Ausgehend von der guten qualitativen und quantitativen Übereinstimmung von Simulationen des Systems Al-Ag-Cu mit experimentellen Ergebnissen wurde die Zusammensetzung der Schmelze verändert. Dabei zeigt sich, dass selbst geringe Änderungen in der Größenordnung von $\pm 1\%$ zu einer signifikanten Änderung der entstehenden Muster und der Phasenanteile führen. Da die Schmelzkonzentration in Experimenten lokalen Schwankungen, z. B. durch schwerkraftinduzierte Segregation oder Konvektion, unterliegen kann, liefern diese Ergebnisse eine weitere Erklärung für das gleichzeitige Auftreten unterschiedlicher Muster während der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika bei gleichen aufgebrachten Prozessbedingungen.
- (v) Abschließend wurden noch erste Untersuchungen zur Etablierung einer direkten Kopplung zwischen den aufgebrachten Prozessparametern und der entstehenden Mikrostruktur durchgeführt. Diese Ergebnisse dienen in zukünftigen Arbeiten dazu, für gewünschte mechanische Eigenschaften die dazu notwendigen Prozessbedingungen festzulegen.

10. Ausblick

In den in dieser Arbeit durchgeföhrten Untersuchungen der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika haben sich weiterführende Fragestellungen ergeben, die im Rahmen sich anschließender Studien analysiert werden sollten, um ein noch besseres Verständnis der Musterbildung während der gerichteten Erstarrung zu erhalten. Für diese kann teilweise der verwendete Löser direkt genutzt werden oder es wurden bereits Ansätze zur Bearbeitung dieser Fragestellungen implementiert.

Bei der Bestimmung des Zusammenhangs zwischen den Prozessbedingungen und der entstehenden Mikrostruktur mit Hilfe einer Hauptkomponentenanalyse basierend auf Zweipunktkorrelation (siehe Abschnitt 8.7) wurde der Einfluss verschiedener Konzentrationen von Ag und Cu sowie der Erstarrungsgeschwindigkeit auf die entstehenden Muster untersucht. Der Einfluss weiterer Prozessgrößen, wie der Steigung des Temperaturgradienten, des Einflusses der Al-Konzentration in der Schmelze oder eines verkippten Temperaturgradienten, ähnlich wie in [269], wäre ebenfalls technisch interessant, um die entstehende Mikrostruktur besser kontrollieren zu können.

Die zusätzliche Kopplung mit den mechanischen Eigenschaften, eine sogenannte Prozess-Struktur-Eigenschafts-Kopplung (engl. process structure property linkage) [336, 337, 340, 368–377] würde es ermöglichen, für gewünschte mechanische Eigenschaften direkt die notwendigen Prozessschritte und deren Parameter zu bestimmen. Derartige Ansätze werden auch bereits in der integrierten computergestützten Materialentwicklung (engl. Integrated Computational Materials Engineering (ICME) [4]) und im Rahmen der Material-Genom-Initiative (engl. Materials Genome Initiative (MGI) [1]) verfolgt.

In den von Dr. A. Dennstedt vom deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt durchgeföhrten Experimenten der gerichteten Erstarrung von Al-Ag-Cu konnten diverse Mikrostrukturumordnungsprozesse in den erstarrten Proben mit Hilfe von Synchrotron томographie detektiert werden. Erste Ergebnisse dazu sind in der gemeinsamen Arbeit [18] publiziert. Eine weitere Auswertung der Daten wird zurzeit durchgeföhr. Dabei zeigen sich u.a. Nukleationsprozesse der Al_2Cu -Phase an Ag_2Al -Al-Grenzflächen, wie sie beispielhaft mit dem roten Kreis in Abb. 10.1 markiert sind. Abb. 10.1 stellt einen Teil eines rekonstruierten Volumens einer gerichtet erstarrten, ternären eutektischen Al-Ag-Cu-Legierung dar, in der ein Nukleationsprozess stattfindet. Die Al-Matrix ist ausgeblendet und die grüne Ag_2Al -Phase ist durchscheinend dargestellt.

Zwar tritt Nukleation in Al-Ag-Cu relativ selten auf, eine Abbildung dieser Art von Nukleationsprozessen in den Phasenfeldsimulationen könnte allerdings zu einer noch besseren qualitativen und quantitativen Übereinstimmung zwischen Simulationen und Experimenten führen. Ein Modell, das durch stochastische Störungen in der Grenzfläche zu einer Nukleation führt, ist bereits im Multiphysikframework Pace3D [134, 315–323] implementiert. Die Anwendung für die gerichtete Erstarrung eines idealen ternären eutektischen Systems ist

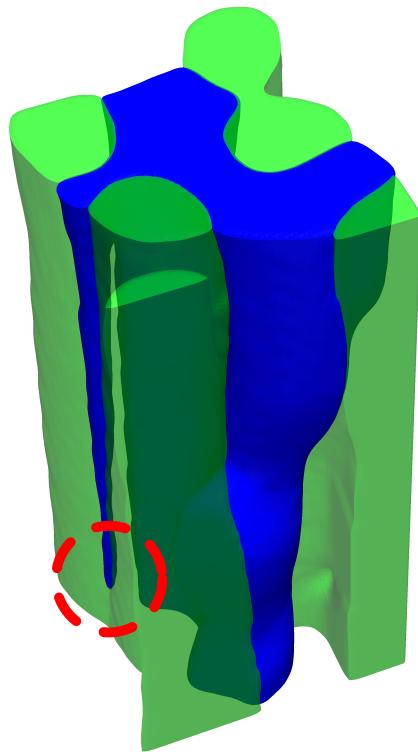


Abbildung 10.1.: Ausschnitt aus der Mikrostruktur einer gerichtet erstarrten Al-Ag-Cu-Legierung, die mit Synchrotron томографии sichtbar gemacht wurde. Mit einem roten Kreis ist eine Nukleation der blauen Al_2Cu -Phase hervorgehoben. Das Experiment wurde von Dr. A. Dennstedt vom deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt durchgeführt und die Synchrotron-Tomographie-Aufnahme wurde an der European Synchrotron Radiation Facility in Grenoble, Frankreich realisiert.

in der zweidimensionalen Simulation in Abb. 10.2 dargestellt. Die drei Festphasen wachsen gemeinsam nach oben in ein mit Schmelze gefülltes Gebiet. In der Abbildung ist die Umgebung der Erstarrungsfront nach unterschiedlichen Zeitschritten abgebildet. Durch die Verwendung eines Nukleationsmodells können sich die Lamellen umordnen, um eine periodische Länge entsprechend ihres λ_{JH} zu erreichen.

Die Verwendung eines Nukleationsmodells wird ebenfalls zur Untersuchung des Wachstums eutektischer Kolonien bzw. Zellwachstum und eutektisch-dendritischen Wachstums benötigt, die skalenübergreifende Probleme darstellen.

Ein Beispiel für gekoppeltes eutektisches und dendritisches Wachstum ist in Abb. 2.2 dargestellt. Da der Dendrit um mehrere Größenordnungen größer als die umgebenden eutektischen Strukturen ist, müssen verschiedene Längenskalen aufgelöst werden, was z. B. mit der Verwendung einer adaptiven Netzverfeinerung [147–152] geschehen kann. Weiterhin muss eine zusätzliche Anisotropie der Grenzflächenenergien in das Modell integriert werden.

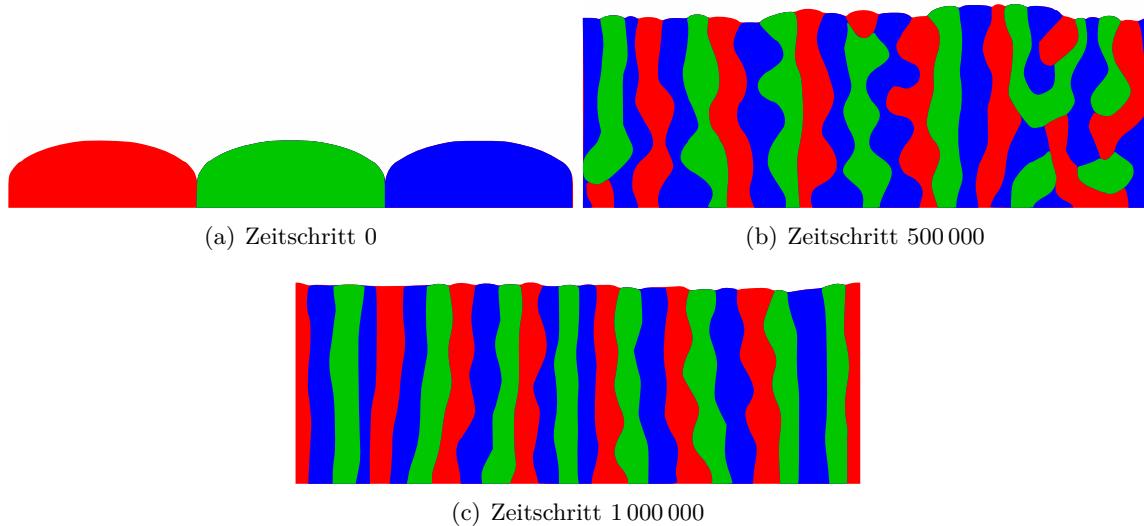


Abbildung 10.2.: Ergebnis einer 2D-Simulation eines idealen ternären eutektischen Systems nach einer verschiedenen Anzahl von Zeitschritten unter Verwendung eines Nukleationsmodells. Die drei Festphasen wachsen gemeinsam nach oben in ein mit Schmelze gefülltes Gebiet.

Ergebnisse zur Stabilität von Zellwachstum im ternären System Al-Si-Mg, die ebenfalls mit dem in dieser Thesis verwendeten Löser berechnet wurden, sind in der Arbeit von Dr. S. Schulz [378] publiziert. In Abb. 10.3 ist das Ergebnis einer großkaligen zweidimensionalen Simulation, die für 3.8 Stunden auf 400 CPUs gerechnet wurde, mit einer Gebietsgröße von $10\,000 \times 8250$ Voxel-Zellen von Dr. S. Schulz dargestellt. Neben den Zellstrukturen bilden sich zusätzlich noch Dendriten mit einer Vorzugsrichtung von 45° zur Wachstumsrichtung.

Das Ergebnis einer 3D-Simulation mit zellulärem Wachstum des Systems Al-Si-Mg von Dr. S. Schulz ist in Abb. 10.4 dargestellt. Diese Simulation hat unter Ausnutzung eines gleitenden Fensters eine Gebietsgröße von $1200 \times 1200 \times 127\,646$ Voxel-Zellen und lief für 20.8 Stunden auf 20 250 CPUs auf dem HazelHen-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart.

In Al-Ag-Cu tritt eine starke Veränderung der Löslichkeit von Ag in der Al-Phase bei Temperaturen unterhalb des ternären eutektischen Punktes auf [15, 30, 31], die zu veränderten Phasenanteilen und unterschiedlichen Mustern führt. Aufgrund des großen zusätzlichen Rechenaufwandes bei der Berechnung der Erstarrung und der darauf folgenden Festphasendiffusion durch die unterschiedlichen Zeitskalen, wurden für die Simulationen in dieser Arbeit die beiden Datensätze CAL und EXP verwendet. In zukünftigen Simulationen soll zunächst die erstarrte Mikrostruktur mit CAL simuliert werden und anschließend die Festphasendiffusion mit dem Parametersatz EXP.

Beim Vergleich der Unterkühlung der dreidimensionalen Simulationen mit den analytischen Ansätzen hat sich für das ideale System eine gute qualitative und quantitative Übereinstimmung ergeben. Für Al-Ag-Cu treten größere Abweichungen auf, die u.a. mit der nicht betrachteten Krümmung der Erstarrungsfront bei der solutalen Unterkühlung erklärt werden können. In [379] wird gezeigt, dass sich für ein binäres eutektisches System die Abweichungen zwischen

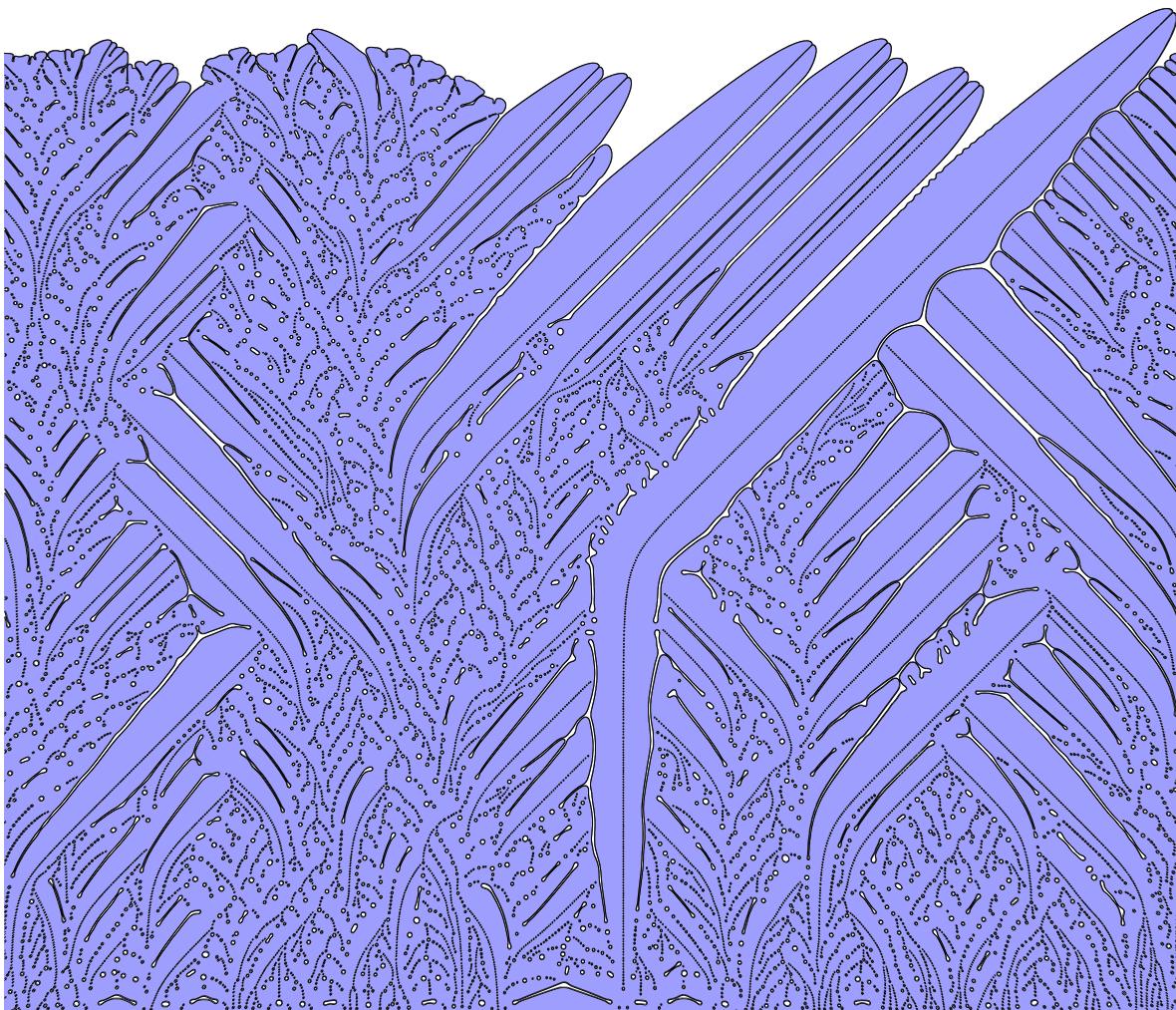


Abbildung 10.3.: Ergebnis einer zweidimensionalen Simulation der Stabilität während des Zellwachstums von Dr. S. Schulz. Die Simulation lief für 3.8 Stunden auf 400 CPUs mit einer Gebietsgröße von $10\,000 \times 8250$ Voxel-Zellen.

Simulationen und Analytik verringern lassen, wenn diese Krümmung der Front mit einberechnet wird. Ansätze für die dreidimensionale Erstarrung und für ternäre eutektische Systeme sind in Vorbereitung.

Neben dem untersuchten System Al-Ag-Cu bietet sich die Analyse weiterer wissenschaftlich und technisch relevanter multikomponentiger eutektischer Systeme wie beispielsweise Ni-Al-Cr, Ni-Al-Mo und Ni-Mo-Co mit großskaligen Simulationen an, da das verwendete Modell auch für diese Systeme verwendet werden kann. Diese Legierungen werden aufgrund ihrer guten Kriechfestigkeit als Hochtemperaturwerkstoffe eingesetzt. Die Modellierung des Systems Ni-Al-Cr mit der Phasenfeldmethode und deren gute Übereinstimmung mit analytischen Werten und experimentellen Schliffbildern ist in [380] publiziert.

Zusätzlich zu der in dieser Thesis betrachteten diffusionskontrollierten gerichteten Erstarrung wäre die Einbeziehung weiterer physikalischer Kräfte empfehlenswert. Zur Untersuchung des

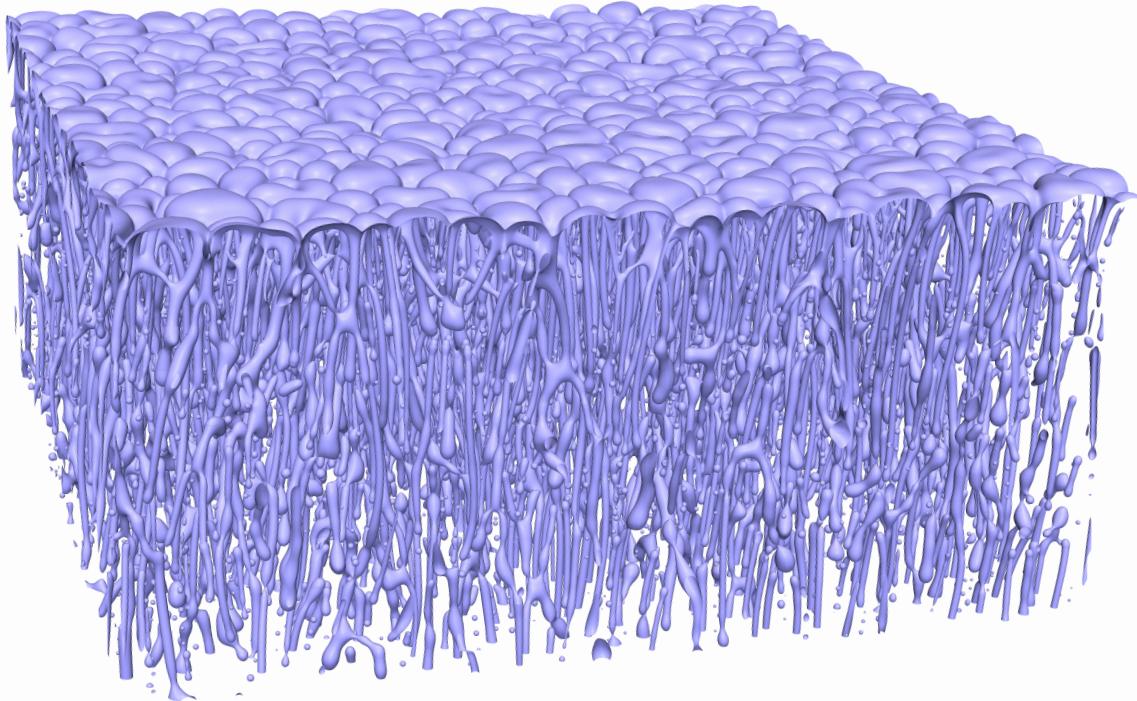


Abbildung 10.4.: Ergebnis einer dreidimensionalen Simulation der Stabilität während des Zellwachstums von Dr. S. Schulz. Die Simulation hat eine Gebietsgröße von $1200 \times 1200 \times 127\,646$ Voxel-Zellen unter Ausnutzung eines gleitenden Fensters und lief für 20.8 Stunden auf 20 250 CPUs auf dem HazelHen-Cluster des Höchstleistungsrechenzentrums Stuttgart.

Einflusses von Gravitation auf die entstehenden Muster sind Experimente zur gerichteten Erstarrung von Al-Ag-Cu auf der internationalen Raumstation ISS im Rahmen des SETA-Projektes (engl. Solidification along an Eutectic path in Ternary in Al-Ag-Cu) geplant [28, 29, 365]. Begleitende Simulationen könnten einen wichtigen Beitrag zum Verständnis des Einflusses von Gravitation liefern und somit helfen Kosten und Zeit zu sparen.

Literaturverzeichnis

- [1] Materials genome initiative for global competitiveness, National Science and Technology Council, Executive Office of the President, 2011.
- [2] P. Caron, T. Khan, Evolution of Ni-based superalloys for single crystal gas turbine blade applications, *Aerospace Science and Technology* 3 (1999) 513–523.
- [3] M. R. Palacin, Recent advances in rechargeable battery materials: a chemist’s perspective, *Chemical Society Reviews* 38 (2009) 2565–2575.
- [4] Integrated computational materials engineering: a transformational discipline for improved competitiveness and national security, The National Academies Press, Washington, DC, USA, 2008.
- [5] C. Rios, S. Milenkovic, S. Gama, R. Caram, Influence of the growth rate on the microstructure of a Nb–Al–Ni ternary eutectic 237 (2002) 90–94.
- [6] U. Böyük, N. Maraşlı, Dependency of eutectic spacings and microhardness on the temperature gradient for directionally solidified Sn–Ag–Cu lead-free solder 119 (2010) 442 – 448.
- [7] U. Böyük, Physical and mechanical properties of Al–Si–Ni eutectic alloy 18 (2012) 933–938.
- [8] G. Spur, *Handbuch Urformen -*, Carl Hanser Verlag GmbH Co KG, M, 2013.
- [9] L. Bartosiewicz, A. Krause, F. Alberts, I. Singh, S. K. Putatunda, Influence of microstructure on high-cycle fatigue behavior of austempered ductile cast iron, *Materials characterization* 30 (1993) 221–234.
- [10] J. Morris Jr, J. F. Goldstein, Z. Mei, Microstructural influences on the mechanical properties of solder, Technical Report, Lawrence Berkeley Lab., CA (United States), 1993.
- [11] J. Jung, J. Park, Influence of microstructure on the mechanical properties of heat-treated cast lamellar structure, *Scripta Materialia* 34 (1996) 1581–1587.
- [12] H. Cao, M. Wessén, Effect of microstructure on mechanical properties of As-Cast Mg-Al alloys, *Metallurgical and materials transactions A* 35 (2004) 309–319.
- [13] C. Jeong, C.-S. Kang, J.-I. Cho, I.-H. Oh, Y.-C. Kim, Effect of microstructure on mechanical properties for A356 casting alloy, *International Journal of Cast Metals Research* 21 (2008) 193–197.
- [14] D. Cooksey, A. Hellawell, The Microstructures of Ternary Eutectic Alloys in the Systems Cd–Sn–(Pb, In, Tl), Al–Cu–(Mg, Zn, Ag) and Zn–Sn–Pb 95 (1967) 183–187.

- [15] A. Genau, L. Ratke, Morphological characterization of the Al–Ag–Cu ternary eutectic 103 (2012) 469–475.
- [16] A. Dennstedt, L. Ratke, Microstructures of Directionally Solidified Al–Ag–Cu Ternary Eutectics 65 (2012) 777–782.
- [17] A. Dennstedt, L. Ratke, A. Choudhury, B. Nestler, New metallographic method for estimation of ordering and lattice parameter in ternary eutectic systems, Metallography, Microstructure, and Analysis 2 (2013) 140–147.
- [18] A. Dennstedt, L. Helfen, P. Steinmetz, B. Nestler, L. Ratke, 3D synchrotron imaging of a directionally solidified ternary eutectic, Metallurgical and Materials Transactions A (2015) 1–4.
- [19] H. Fredriksson, U. Akerlind, Solidification and crystallization processing in metals and alloys, John Wiley & Sons, 2012.
- [20] A. L. Genau, L. Ratke, Crystal orientation and morphology in Al–Ag–Cu ternary eutectic 27 (2012) 012032.
- [21] A. Dennstedt, A. Choudhury, L. Ratke, B. Nestler, Microstructures in a ternary eutectic alloy: devising metrics based on neighbourhood relationships 117 (2016) 012025.
- [22] D. McCartney, J. Hunt, R. Jordan, The structures expected in a simple ternary eutectic system: Part 1. theory 11 (1980) 1243–1249.
- [23] J. De Wilde, L. Froyen, S. Rex, Coupled two-phase [α (al)+ θ (Al 2 Cu)] planar growth and destabilisation along the univariant eutectic reaction in Al–Cu–Ag alloys 51 (2004) 533–538.
- [24] U. Büyük, N. Maraşlı, H. Kaya, E. Çadırlı, K. Keşlioğlu, Directional solidification of Al–Cu–Ag alloy 95 (2009) 923–932.
- [25] U. Büyük, S. Engin, N. Maraşlı, Microstructural characterization of unidirectional solidified eutectic Al–Si–Ni alloy 62 (2011) 844 – 851.
- [26] R. Mehrabian, M. Keane, M. Flemings, Interdendritic fluid flow and macrosegregation; influence of gravity, Metallurgical and Materials Transactions 1 (1970) 1209–1220.
- [27] P. V. Morokhov, V. M. Ananin, A. A. Ivannikov, O. N. Sevryukov, A. N. Suchkov, Gravity-induced macro-segregation of melt and its effect on viscosity and differential thermal analysis, Tsvetnye Metally (Non-ferrous metals) 12 (2014).
- [28] S. Rex, ACCESS e.V., RWTH Aachen, SETA - Das Erstarrungsverhalten von mehrkomponentigen Legierungen, 2014-03-07. URL: http://www.dlr.de/dlr/desktopdefault.aspx/tabid-10337/1346_read-10047//usetemplate-print/, abgerufen: 2017-02-07.
- [29] M. Serefoglu, Microstructure Evolution Laboratory, News, 2016. URL: <https://mel.ku.edu.tr/node/4>, abgerufen: 2017-02-07.
- [30] V. Witusiewicz, U. Hecht, S. Fries, S. Rex, The Ag–Al–Cu system: Part I: Reassessment of the constituent binaries on the basis of new experimental data 385 (2004) 133–143.
- [31] V. Witusiewicz, U. Hecht, S. Fries, S. Rex, The Ag–Al–Cu system: Part II: A thermodynamic evaluation of the ternary system 387 (2005) 217–227.

- [32] N. Moelans, B. Blanpain, P. Wollants, An introduction to phase-field modeling of microstructure evolution 32 (2008) 268–294.
- [33] G. E. Moore, Cramming more components onto integrated circuits, reprinted from electronics, volume 38, number 8, april 19, 1965, pp. 114 ff., IEEE Solid-State Circuits Newsletter 3 (2006) 33–35.
- [34] J. Hötzer, M. Kellner, P. Steinmetz, B. Nestler, Applications of the Phase-Field Method for the Solidification of Microstructures in Multi-Component Systems, Journal of the Indian Institute of Science 96 (2016) 235–256. JH,MK,PS are equal authors.
- [35] B. Nestler, A 3D parallel simulator for crystal growth and solidification in complex alloy systems 275 (2005) e273–e278.
- [36] M. Plapp, Unified derivation of phase-field models for alloy solidification from a grand-potential functional 84 (2011) 031601.
- [37] A. Choudhury, B. Nestler, Grand-potential formulation for multicomponent phase transformations combined with thin-interface asymptotics of the double-obstacle potential 85 (2012) 021602.
- [38] J. Hötzer, M. Jainta, P. Steinmetz, B. Nestler, A. Dennstedt, A. Genau, M. Bauer, H. Köstler, U. Rüde, Large scale phase-field simulations of directional ternary eutectic solidification, Acta Materialia 93 (2015) 194–204.
- [39] J. Rowlinson, Translation of J.D. van der Waals’“the thermodynamik theory of capillarity under the hypothesis of a continuous variation of density” 20 (1979) 197–200.
- [40] On the theory of superconductivity, in: D. Haar (Ed.), Collected Papers of L.D. Landau, Pergamon, 1965, pp. 546 – 568.
- [41] L. Landau, I. Khalatikow, The Selected Works of L.D. Landau (Engl. transl.), 1963.
- [42] J. W. Cahn, J. E. Hilliard, Free Energy of a Nonuniform System. I. Interfacial Free Energy 28 (1958) 258–267.
- [43] J. W. Cahn, Free Energy of a Nonuniform System. II. Thermodynamic Basis 30 (1959) 1121–1124.
- [44] J. W. Cahn, J. E. Hilliard, Free energy of a nonuniform system. III. nucleation in a two-component incompressible fluid 31 (1959) 688–699.
- [45] J. Hilliard, J. Cahn, On the nature of the interface between a solid metal and its melt 6 (1958) 772 – 774.
- [46] S. M. Allen, J. W. Cahn, A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening 27 (1979) 1085 – 1095.
- [47] S. Allen, J. Cahn, Ground state structures in ordered binary alloys with second neighbor interactions 20 (1972) 423 – 433.
- [48] S. M. Allen, J. W. Cahn, A correction to the ground state of FCC binary ordered alloys with first and second neighbor pairwise interactions 7 (1973) 1261 – 1264.

- [49] B. Halperin, P. Hohenberg, S. Ma, Renormalization-group methods for critical dynamics: I. recursion relations and effects of energy conservation 10 (1974) 139–153.
- [50] J. Langer, R. Sekerka, Theory of departure from local equilibrium at the interface of a two-phase diffusion couple 23 (1975) 1225–1237.
- [51] J. B. Collins, H. Levine, Diffuse interface model of diffusion-limited crystal growth 31 (1985) 6119.
- [52] P. C. Hohenberg, B. I. Halperin, Theory of dynamic critical phenomena 49 (1977) 435–479.
- [53] G. Caginalp, P. Fife, Phase-field methods for interfacial boundaries 33 (1986) 7792.
- [54] G. Caginalp, P. Fife, Higher-order phase field models and detailed anisotropy 34 (1986) 4940.
- [55] J. Langer, Models of pattern formation in first-order phase transitions 1 (1986) 165–186.
- [56] A. Wheeler, W. Boettinger, G. McFadden, Phase-field model of solute trapping during solidification 47 (1993) 1893.
- [57] A. A. Wheeler, W. J. Boettinger, G. B. McFadden, Phase-field model for isothermal phase transitions in binary alloys 45 (1992) 7424–7439.
- [58] R. Kobayashi, Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth 63 (1993) 410 – 423.
- [59] A. Karma, Phase-field model of eutectic growth 49 (1994) 2245.
- [60] B. Grossmann, K. Elder, M. Grant, J. Kosterlitz, Directional solidification in two and three dimensions 71 (1993) 3323.
- [61] G. Caginalp, W. Xie, Phase-field and sharp-interface alloy models 48 (1993) 1897.
- [62] A. Wheeler, G. McFadden, A ξ -vector formulation of anisotropic phase-field models: 3D asymptotics 7 (1996) 367–381.
- [63] R. Folch, M. Plapp, Towards a quantitative phase-field model of two-phase solidification 68 (2003) 010602.
- [64] O. Penrose, P. Fife, Thermodynamically consistent models of phase-field type for the kinetic of phase transitions 43 (1990) 44 – 62.
- [65] S. Wang, R. Sekerka, A. Wheeler, B. Murray, S. Coriell, R. Braun, G. McFadden, Thermodynamically-consistent phase-field models for solidification 69 (1993) 189–200.
- [66] B. Nestler, H. Garcke, B. Stinner, Multicomponent alloy solidification: Phase-field modeling and simulations (2005).
- [67] A. Choudhury, B. Nestler, A. Telang, M. Selzer, F. Wendler, Growth morphologies in peritectic solidification of Fe–C: A phase-field study 58 (2010) 3815 – 3823.
- [68] S. Kim, W. Kim, T. Suzuki, M. Ode, Phase-field modeling of eutectic solidification 261 (2004) 135–158.

- [69] P. Steinmetz, M. Kellner, J. Hötzer, A. Dennstedt, B. Nestler, Phase-field study of the pattern formation in Al-Ag-Cu under the influence of the melt concentration 121 (2016) 6 – 13.
- [70] P. Steinmetz, Y. Yabansu, J. Hötzer, M. Jainta, B. Nestler, S. Kalidindi, Analytics for microstructure datasets produced by phase-field simulations 103 (2016) 192–203.
- [71] P. Steinmetz, J. Hötzer, M. Kellner, A. Dennstedt, B. Nestler, Large-scale phase-field simulations of ternary eutectic microstructure evolution 117 (2016) 205–214.
- [72] R. Almgren, Second-order phase field asymptotics for unequal conductivities 59 (1999) 2086–2107.
- [73] R. Sekerka, Morphology: from sharp interface to phase field models 264 (2004) 530–540.
- [74] H. Alt, I. Pawlow, A mathematical model of dynamics of non-isothermal phase separation 59 (1992) 389–416.
- [75] A. A. Wheeler, G. McFadden, W. Boettinger, Phase-field model for solidification of a eutectic alloy, in: Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 1946, 452, The Royal Society, 1996, pp. 495–525.
- [76] Z. Bi, R. Sekerka, Phase-field model of solidification of a binary alloy 261 (1998) 95–106.
- [77] J. Tiaden, B. Nestler, H. Diepers, I. Steinbach, The multiphase-field model with an integrated concept for modelling solute diffusion 115 (1998) 73–86.
- [78] I. Steinbach, F. Pezzolla, B. Nestler, M. Seeßelberg, R. Prieler, G. Schmitz, J. Rezende, A phase field concept for multiphase systems 94 (1996) 135–147.
- [79] H. Garcke, B. Nestler, B. Stoth, On anisotropic order parameter models for multi-phase systems and their sharp interface limits 115 (1998) 87–108.
- [80] B. Nestler, A. Wheeler, A multi-phase-field model of eutectic and peritectic alloys: numerical simulation of growth structures 138 (2000) 114–133.
- [81] N. Moelans, A quantitative and thermodynamically consistent phase-field interpolation function for multi-phase systems 59 (2011) 1077–1086.
- [82] H. Garcke, B. Nestler, B. Stinner, A diffuse interface model for alloys with multiple components and phases 64 (2004) 775–779.
- [83] P. Cha, D. Yeon, J. Yoon, Phase-field model for multicomponent alloy solidification 274 (2005) 281–293.
- [84] J. Eiken, B. Böttger, I. Steinbach, Multiphase-field approach for multicomponent alloys with extrapolation scheme for numerical application 73 (2006) 066122.
- [85] G. Caginalp, Stefan and hele-shaw type models as asymptotic limits of the phase-field equations 39 (1989) 5887.
- [86] S. Kim, W. Kim, T. Suzuki, Interfacial compositions of solid and liquid in a phase-field model with finite interface thickness for isothermal solidification in binary alloys 58 (1998) 3316.
- [87] S. Kim, W. Kim, T. Suzuki, Phase-field model for binary alloys 60 (1999) 7186.

- [88] P. Cha, D. Yeon, J. Yoon, A phase field model for isothermal solidification of multicomponent alloys 49 (2001) 3295–3307.
- [89] U. Grafe, B. Böttger, J. Tiaden, S. Fries, Coupling of multicomponent thermodynamic databases to a phase field model: application to solidification and solid state transformations of superalloys 42 (2000) 1179–1186.
- [90] U. Grafe, B. Böttger, J. Tiaden, S. Fries, Simulations of the initial transient during directional solidification of multicomponent alloys using the phase field method 8 (2000) 871–879.
- [91] H. Kobayashi, M. Ode, S. G. Kim, W. T. Kim, T. Suzuki, Phase-field model for solidification of ternary alloys coupled with thermodynamic database 48 (2003) 689 – 694.
- [92] R. Qin, E. Wallach, A phase-field model coupled with a thermodynamic database 51 (2003) 6199–6210.
- [93] R. Qin, E. Wallach, R. Thomson, A phase-field model for the solidification of multicomponent and multiphase alloys 279 (2005) 163–169.
- [94] I. Steinbach, B. Böttger, J. Eiken, N. Warnken, S. Fries, Calphad and phase-field modeling: a successful liaison 28 (2007) 101–106.
- [95] S. Zhang, R. Zhang, X. Qu, W. Fang, M. Liu, Phase field simulation for non-isothermal solidification of multicomponent alloys coupled with thermodynamics database 23 (2013) 2361 – 2367.
- [96] G. Schmitz, B. Zhou, B. Böttger, S. Klima, J. Villain, Phase-field modeling and experimental observation of microstructures in solidifying Sn–Ag–Cu solders 42 (2013) 2658–2666.
- [97] A. Choudhury, M. Kellner, B. Nestler, A method for coupling the phase-field model based on a grand-potential formalism to thermodynamic databases (2015).
- [98] W. Huang, Y. Chang, Thermodynamic properties of the Ni–Al–Cr system 7 (1999) 863 – 874.
- [99] N. Dupin, I. Ansara, B. Sundman, Thermodynamic re-assessment of the ternary system Al–Cr–Ni 25 (2001) 279–298.
- [100] V. T. Witusiewicz, U. H., S. Rex, F. Sommer, Partial and integral enthalpies of mixing of liquid Ag–Al–Cu and Ag–Cu–Zn alloys 337 (2002) 189 – 201.
- [101] V. Witusiewicz, A. Bondar, U. Hecht, S. Rex, T. Velikanova, The Al–B–Nb–Ti system: II. Thermodynamic description of the constituent ternary system B–Nb–Ti 456 (2008) 143 – 150.
- [102] V. Witusiewicz, A. Bondar, U. Hecht, T. Velikanova, The Al–B–Nb–Ti system: Iv. experimental study and thermodynamic re-evaluation of the binary Al–Nb and ternary Al–Nb–Ti systems 472 (2009) 133 – 161.

- [103] V. Witusiewicz, A. Bondar, U. Hecht, J. Zollinger, L. Artyukh, T. Velikanova, The Al–B–Nb–Ti system: V. thermodynamic description of the ternary system Al–B–Ti 474 (2009) 86 – 104.
- [104] V. Witusiewicz, A. Bondar, U. Hecht, V. Voblikov, O. Fomichov, V. Petyukh, S. Rex, Experimental study and thermodynamic modelling of the ternary Al–Ta–Ti system 19 (2011) 234 – 259.
- [105] V. Witusiewicz, A. Bondar, U. Hecht, J. Zollinger, T. Velikanova, The Al–B–Nb–Ti system. VI. experimental studies and thermodynamic modeling of the constituent Al–B–Nb system 587 (2014) 234 – 250.
- [106] A. Khvan, I. Fartushna, M. Mardani, A. Dinsdale, V. Cheverikin, An experimental investigation of the liquidus projection in the Fe–Ce–C system 651 (2015) 350 – 356.
- [107] V. Witusiewicz, B. Hallstedt, A. Bondar, U. Hecht, S. Sleptsov, T. Velikanova, Thermodynamic description of the Al–C–Ti system 623 (2015) 480 – 496.
- [108] V. Witusiewicz, A. Bondar, U. Hecht, T. Velikanova, Thermodynamic re-modelling of the ternary Al–Cr–Ti system with refined Al–Cr description 644 (2015) 939 – 958.
- [109] I. Fartushna, A. Khvan, A. Dinsdale, V. Cheverikin, D. Ivanov, A. Kondratiev, An experimental investigation of liquidus and solidus projections for the Fe–Mn–Ce system 654 (2016) 424 – 434.
- [110] B. Böttger, U. Grafe, D. Ma, S. Fries, Simulation of microsegregation and microstructural evolution in directionally solidified superalloys 16 (2000) 1425–1428.
- [111] B. Böttger, J. Eiken, I. Steinbach, Phase field simulation of equiaxed solidification in technical alloys 54 (2006) 2697–2704.
- [112] B. Böttger, J. Eiken, M. Apel, Multi-ternary extrapolation scheme for efficient coupling of thermodynamic data to a multi-phase-field model 108, Part B (2015) 283 – 292. Selected Articles from Phase-field Method 2014 International Seminar.
- [113] M. Conti, Solidification of binary alloys: Thermal effects studied with the phase-field model 55 (1997) 765–771.
- [114] M. Conti, Thermal and chemical diffusion in the rapid solidification of binary alloys 61 (2000) 642–650.
- [115] L. Zhang, Y. Du, I. Steinbach, Q. Chen, B. Huang, Diffusivities of an Al–Fe–Ni melt and their effects on the microstructure during solidification 58 (2010) 3664 – 3675.
- [116] K. Wu, Y. Chang, Y. Wang, Simulating interdiffusion microstructures in Ni–Al–Cr diffusion couples: a phase field approach coupled with CALPHAD database 50 (2004) 1145 – 1150.
- [117] Q. Chen, N. Ma, K. Wu, Y. Wang, Quantitative phase field modeling of diffusion-controlled precipitate growth and dissolution in Ti–Al–V 50 (2004) 471–476.
- [118] A. Karma, W. Rappel, Phase-field method for computationally efficient modeling of solidification with arbitrary interface kinetics 53 (1996) R3017.

- [119] A. Karma, W. Rappel, Quantitative phase-field modeling of dendritic growth in two and three dimensions 57 (1998) 4323.
- [120] A. Karma, Phase-field formulation for quantitative modeling of alloy solidification 87 (2001) 115701.
- [121] J. Ramirez, C. Beckermann, Quantitative modeling of binary alloy solidification with coupled heat and solute diffusion via the phase-field method (2003).
- [122] S. Kim, W. Kim, T. Suzuki, Phase-field model with a reduced interface diffuseness 263 (2004) 620–628.
- [123] A. Mullis, Quantification of mesh induced anisotropy effects in the phase-field method 36 (2006) 345–353.
- [124] B. Nestler, D. Danilov, P. Galenko, Crystal growth of pure substances: Phase-field simulations in comparison with analytical and experimental results 207 (2005) 221–239.
- [125] W. Boettinger, A. Wheeler, B. Murray, G. McFadden, Prediction of solute trapping at high solidification rates using a diffuse interface phase-field theory of alloy solidification 178 (1994) 217–223.
- [126] N. Ahmad, A. Wheeler, W. Boettinger, G. McFadden, Solute trapping and solute drag in a phase-field model of rapid solidification 58 (1998) 3436.
- [127] M. Conti, M. Fermani, Interface dynamics and solute trapping in alloy solidification with density change 67 (2003) 026117.
- [128] H. Wang, F. Liu, G. Ehlen, D. Herlach, Application of the maximal entropy production principle to rapid solidification: a multi-phase-field model 61 (2013) 2617–2627.
- [129] B. Echebarria, R. Folch, A. Karma, M. Plapp, Quantitative phase-field model of alloy solidification 70 (2004) 061604.
- [130] S. Kim, A phase-field model with antitrapping current for multicomponent alloys with arbitrary thermodynamic properties 55 (2007) 4391–4399.
- [131] A. Carré, B. Böttger, M. Apel, Implementation of an antitrapping current for a multicomponent multiphase-field ansatz 380 (2013) 5 – 13.
- [132] S. G. Kim, D. I. Kim, W. T. Kim, Y. B. Park, Computer simulations of two-dimensional and three-dimensional ideal grain growth 74 (2006) 061605.
- [133] I. Steinbach, F. Pezzolla, A generalized field method for multiphase transformations using interface fields 134 (1999) 385–393.
- [134] M. Selzer, Mechanische und strömungsmechanische topologieoptimierung mit der phasenfeldmethode, 2014.
- [135] J. Rosam, A fully implicit, fully adaptive multigrid method for multiscale phase-field modelling, 2007.
- [136] J. Rosam, P. Jimack, A. Mullis, A fully implicit, fully adaptive time and space discretisation method for phase-field simulation of binary alloy solidification 225 (2007) 1271 – 1287.

- [137] C. Graser, R. Kornhuber, On preconditioned uzawa-type iterations for a saddle point problem with inequality constraints 55 (2007) 91.
- [138] J. Rosam, P. Jimack, A. Mullis, An adaptive, fully implicit multigrid phase-field model for the quantitative simulation of non-isothermal binary alloy solidification 56 (2008) 4559 – 4569.
- [139] J. Green, P. Jimack, A. Mullis, J. Rosam, Towards a three-dimensional parallel, adaptive, multilevel solver for the solution of nonlinear, time-dependent, phase-change problems 21 (2009) 251–274.
- [140] A. Mullis, J. Rosam, P. Jimack, Solute trapping and the effects of anti-trapping currents on phase-field models of coupled thermo-solutal solidification 312 (2010) 1891 – 1897.
- [141] Z. Guo, J. Mi, P. Grant, An implicit parallel multigrid computing scheme to solve coupled thermal-solute phase-field equations for dendrite evolution 231 (2012) 1781 – 1796.
- [142] C. Gräser, R. Kornhuber, U. Sack, Time discretizations of anisotropic Allen–Cahn equations 33 (2013) 1226–1244.
- [143] C. Goodyer, P. Jimack, A. Mullis, H. Dong, Y. Xie, On the fully implicit solution of a phase-field model for binary alloy solidification in three dimensions 4 (2012) 665–684.
- [144] L. Vanherpe, F. Wendler, B. Nestler, S. Vandewalle, A multigrid solver for phase field simulation of microstructure evolution 80 (2010) 1438 – 1448. Multiscale modeling of moving interfaces in materials.
- [145] L. Vanherpe, N. Moelans, B. Blanpain, S. Vandewalle, Pinning effect of spheroid second-phase particles on grain growth studied by three-dimensional phase-field simulations 49 (2010) 340–350.
- [146] R. Kornhuber, R. Krause, On multigrid methods for vector-valued Allen–Cahn equations with obstacle potential (2002) 307.
- [147] G. Amberg, Semisharp phase field method for quantitative phase change simulations 91 (2003) 265505.
- [148] T. Takaki, T. Fukuoka, Y. Tomita, Phase-field simulation during directional solidification of a binary alloy using adaptive finite element method 283 (2005) 263 – 278.
- [149] N. Ofori-Opoku, N. Provatas, A quantitative multi-phase field model of polycrystalline alloy solidification 58 (2010) 2155–2164.
- [150] C. Lan, Y. Chang, Efficient adaptive phase field simulation of directional solidification of a binary alloy 250 (2003) 525–537.
- [151] Y. Li, J. Kim, Phase-field simulations of crystal growth with adaptive mesh refinement 55 (2012) 7926 – 7932.
- [152] R. Folch, M. Plapp, Quantitative phase-field modeling of two-phase growth 72 (2005) 011602.
- [153] N. Provatas, M. Greenwood, B. Athreya, N. Goldenfeld, J. Dantzig, Multiscale modeling of solidification: Phase-field methods to adaptive mesh refinement 19 (2005) 4525–4565.

- [154] A. Vondrouš, M. Selzer, J. Hötzer, B. Nestler, Parallel Computing for Phase-field Models 28 (2014) 61–72.
- [155] M. Bauer, J. Hötzer, M. Jainta, P. Steinmetz, M. Berghoff, F. Schornbaum, C. Godenschwager, H. Köstler, B. Nestler, U. Rüde, Massively parallel phase-field simulations for ternary eutectic directional solidification, in: Proceedings of the International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis, ACM, 2015, p. 8.
- [156] S. Akamatsu, M. Plapp, Eutectic and peritectic solidification patterns (2015).
- [157] J. Cahn, On spinodal decomposition 9 (1961) 795–801.
- [158] J. Langer, Theory of spinodal decomposition in alloys 65 (1971) 53–86.
- [159] R. Balluffi, S. Allen, W. Carter, Kinetics of materials, John Wiley & Sons, 2005.
- [160] M. Tang, A. Karma, et al., Surface modes of coherent spinodal decomposition 108 (2012) 265701.
- [161] F. Wang, A. Choudhury, C. Strassacker, B. Nestler, Spinodal decomposition and droplets entrapment in monotectic solidification 137 (2012) 034702.
- [162] F. Wang, A. Choudhury, M. Selzer, R. Mukherjee, B. Nestler, Effect of solutal marangoni convection on motion, coarsening, and coalescence of droplets in a monotectic system 86 (2012) 066318.
- [163] J. Alkemper, S. Sous, C. Stöcker, L. Ratke, Directional solidification in an aerogel furnace with high resolution optical temperature measurements, Journal of crystal growth 191 (1998) 252–260.
- [164] W. W. Mullins, R. Sekerka, Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy 35 (1964) 444–451.
- [165] J. Langer, Instabilities and pattern formation in crystal growth, Reviews of Modern Physics 52 (1980) 1.
- [166] J. Langer, Dendrites, viscous fingers, and the theory of pattern formation, in: Dynamics and Patterns in Complex Fluids, Springer, 1990, pp. 190–193.
- [167] D. A. Kessler, J. Koplik, H. Levine, Pattern selection in fingered growth phenomena, Advances in Physics 37 (1988) 255–339.
- [168] G. Ivantsov, The temperature field around a spherical, cylindrical, or pointed crystal growing in a cooling solution, in: Dokl. Akad. Nauk SSSR, volume 58, 1947, pp. 567–569.
- [169] G. Horvay, J. Cahn, Dendritic and spheroidal growth, Acta Metallurgica 9 (1961) 695–705.
- [170] W. Kurz, D. Fisher, Dendrite growth at the limit of stability: tip radius and spacing, Acta Metallurgica 29 (1981) 11–20.
- [171] J. Lipton, M. Glicksman, W. Kurz, Dendritic growth into undercooled alloy metals, Materials Science and Engineering 65 (1984) 57–63.
- [172] J. Lipton, W. Kurz, R. Trivedi, Rapid dendrite growth in undercooled alloys, Acta Metallurgica 35 (1987) 957–964.

- [173] W. A. Tiller, J. Rutter, The effect of growth conditions upon the solidification of a binary alloy, *Canadian Journal of Physics* 34 (1956) 96–121.
- [174] R. Sharp, A. Hellawell, Solute distributions at non-planar, solid-liquid growth fronts: Iv. ripening of cells and dendrites behind the growth front, *Journal of Crystal Growth* 11 (1971) 77–91.
- [175] D. McCartney, J. Hunt, Measurements of cell and primary dendrite arm spacings in directionally solidified aluminium alloys, *Acta Metallurgica* 29 (1981) 1851–1863.
- [176] S. C. Huang, M. Glicksman, Overview 12: Fundamentals of dendritic solidification I. Steady-state tip growth, *Acta Metallurgica* 29 (1981) 701–715.
- [177] R. Trivedi, K. Somboonsuk, Constrained dendritic growth and spacing, *Materials science and engineering* 65 (1984) 65–74.
- [178] J. Langer, H. Müller-Krumbhaar, Theory of dendritic growth I. Elements of a stability analysis, *Acta Metallurgica* 26 (1978) 1681–1687.
- [179] S. C. Huang, M. Glicksman, Overview 12: Fundamentals of dendritic solidification II development of sidebranch structure, *Acta Metallurgica* 29 (1981) 717–734.
- [180] R. Trivedi, Interdendritic spacing: Part II. A comparison of theory and experiment, *Metallurgical Transactions A* 15 (1984) 977–982.
- [181] C. Paradies, R. Smith, M. Glicksman, The influence of convection during solidification on fragmentation of the mushy zone of a model alloy, *Metallurgical and Materials Transactions A* 28 (1997) 875–883.
- [182] S. N. Tewari, R. Shah, H. Song, Effect of magnetic field on the microstructure and macrosegregation in directionally solidified pb-sn alloys, *Metallurgical and materials transactions A* 25 (1994) 1535–1544.
- [183] M. Burden, J. Hunt, Cellular and dendritic growth. I, *Journal of Crystal Growth* 22 (1974) 99–108.
- [184] M. Tassa, J. Hunt, The measurement of al-cu dendrite tip and eutectic interface temperatures and their use for predicting the extent of the eutectic range, *Journal of Crystal Growth* 34 (1976) 38–48.
- [185] A. Geying, L. Lixin, Dendrite spacing in unidirectionally solidified Al-Cu alloy, *Journal of crystal growth* 80 (1987) 383–392.
- [186] M. Gündüz, E. Çadırlı, Directional solidification of aluminium–copper alloys, *Materials Science and Engineering: A* 327 (2002) 167–185.
- [187] D. Eskin, Q. Du, D. Ruvalcaba, L. Katgerman, Experimental study of structure formation in binary al–cu alloys at different cooling rates, *Materials Science and Engineering: A* 405 (2005) 1–10.
- [188] M. Rebow, D. Browne, On the dendritic tip stability parameter for aluminium alloy solidification, *Scripta materialia* 56 (2007) 481–484.
- [189] A. Wheeler, B. Murray, R. Schaefer, Computation of dendrites using a phase field model 66 (1993) 243 – 262.

- [190] S. Wang, R. Sekerka, Computation of the dendritic operating state at large supercoolings by the phase field model 53 (1996) 3760–3776.
- [191] A. Karma, W. Rappel, Numerical simulation of three-dimensional dendritic growth 77 (1996) 4050.
- [192] W. Boettinger, J. Warren, The phase-field method: simulation of alloy dendritic solidification during recalescence 27 (1996) 657–669.
- [193] D. Ma, P. Sahm, Primary spacing in directional solidification 29 (1998) 1113–1119.
- [194] N. Provatas, N. Goldenfeld, J. Dantzig, Efficient computation of dendritic microstructures using adaptive mesh refinement 80 (1998) 3308.
- [195] A. Karma, W. Rappel, Phase-field model of dendritic sidebranching with thermal noise 60 (1999) 3614.
- [196] Y. T. Kim, N. Provatas, N. Goldenfeld, J. Dantzig, Universal dynamics of phase-field models for dendritic growth 59 (1999) R2546.
- [197] H. Diepers, D. Ma, I. Steinbach, History effects during the selection of primary dendrite spacing. comparison of phase-field simulations with experimental observations 237–239, Part 1 (2002) 149 – 153. The thirteenth international conference on Crystal Growth in conjunction with the eleventh international conference on Vapor Growth and Epitaxy.
- [198] W. L. George, J. A. Warren, A parallel 3d dendritic growth simulator using the phase-field method 177 (2002) 264–283.
- [199] L. Gránásy, T. Börzsönyi, T. Pusztai, Crystal nucleation and growth in binary phase-field theory 237 (2002) 1813–1817.
- [200] L. Gránásy, T. Börzsönyi, T. Pusztai, Nucleation and bulk crystallization in binary phase field theory 88 (2002) 206105.
- [201] L. Gránásy, T. Pusztai, T. Börzsönyi, J. Warren, J. Douglas, A general mechanism of polycrystalline growth 3 (2004) 645–650.
- [202] D. Danilov, B. Nestler, Dendritic to globular morphology transition in ternary alloy solidification 93 (2004) 215501.
- [203] B. Böttger, J. Eiken, M. Ohno, G. Klaus, M. Fehlbier, R. Schmid-Fetzer, I. Steinbach, A. Bührig-Polaczek, Controlling microstructure in magnesium alloys: A combined thermodynamic, experimental and simulation approach 8 (2006) 241–247.
- [204] P. Galenko, S. Reutzel, D. Herlach, S. Fries, I. Steinbach, M. Apel, Dendritic solidification in undercooled Ni–Zr–Al melts: Experiments and modeling 57 (2009) 6166 – 6175.
- [205] J. Eiken, A phase-field model for technical alloy solidification, Shaker Verlag, 2010.
- [206] T. Shimokawabe, T. Aoki, T. Takaki, A. Yamanaka, A. Nukada, T. Endo, N. Maruyama, S. Matsuoka, Peta-scale phase-field simulation for dendritic solidification on the TSUBAME 2.0 supercomputer (2011) 1–11.
- [207] A. Yamanaka, T. Aoki, S. Ogawa, T. Takaki, GPU-accelerated phase-field simulation of dendritic solidification in a binary alloy 318 (2011) 40–45.

- [208] E. Wesner, A. Choudhury, A. August, M. Berghoff, B. Nestler, A phase-field study of large-scale dendrite fragmentation in Al–Cu 359 (2012) 107–121.
- [209] T. Takaki, T. Shimokawabe, M. Ohno, A. Yamanaka, T. Aoki, Unexpected selection of growing dendrites by very-large-scale phase-field simulation 382 (2013) 21–25.
- [210] T. Takaki, Phase-field modeling and simulations of dendrite growth 54 (2014) 437–444.
- [211] J. Warren, W. Boettinger, Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase-field method 43 (1995) 689 – 703.
- [212] I. Loginova, G. Amberg, J. Ågren, Phase-field simulations of non-isothermal binary alloy solidification 49 (2001) 573–581.
- [213] H. Emmerich, M. Jurk, R. Siquieri, Multiscale simulations of micro-structure selection in binary alloy solidification 241 (2004) 2128–2135.
- [214] J. Hunt, D. Hurle, K. Jackson, E. Jakeman, On the theory of the stability of lamellar eutectics 1 (1970) 318–320.
- [215] J. Langer, Eutectic solidification and marginal stability 44 (1980) 1023–1026.
- [216] S. Coriell, G. McFadden, P. Voorhees, R. Sekerka, Stability of a planar interface during solidification of a multicomponent system 82 (1987) 295 – 302.
- [217] K. Kassner, A. Valance, C. Misbah, D. Temkin, New broken-parity state and a transition to anomalous lamellae in eutectic growth, Physical Review E 48 (1993) 1091.
- [218] K. Kassner, C. Misbah, R. Baumann, Eutectic dynamics: A host of new states 51 (1995) R2751.
- [219] A. Karma, A. Sarkissian, Morphological instabilities of lamellar eutectics 27 (1996) 635–656.
- [220] K. Kassner, C. Misbah, Spontaneous parity-breaking transition in directional growth of lamellar eutectic structures, Phys. Rev. A 44 (1991) 6533–6543.
- [221] K. Kassner, C. Misbah, Growth of lamellar eutectic structures: The axisymmetric state, Phys. Rev. A 44 (1991) 6513–6532.
- [222] K. Kassner, C. Misbah, Similarity laws in eutectic growth, Phys. Rev. Lett. 66 (1991) 445–448.
- [223] A. Parisi, M. Plapp, Stability of lamellar eutectic growth 56 (2008) 1348–1357.
- [224] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, M. Serefoğlu, G. Faivre, A theory of thin lamellar eutectic growth with anisotropic interphase boundaries 60 (2012) 3199 – 3205.
- [225] V. T. Witusiewicz, U. Hecht, L. Sturz, S. Rex, Phase equilibria and eutectic growth in ternary organic system (d) camphor–neopentylglycol–succinonitrile, Journal of crystal growth 286 (2006) 431–439.
- [226] V. T. Witusiewicz, U. Hecht, L. Sturz, S. Rex, Phase equilibria and eutectic growth in ternary organic system amino-methyl-propanediol-(d)camphor-neopentylglycol, Journal of crystal growth 286 (2006) 137–145.

- [227] G. Faivre, J. Mergy, Tilt bifurcation and dynamical selection by tilt domains in thin-film lamellar eutectic growth: Experimental evidence of a tilt bifurcation, *Phys. Rev. A* 45 (1992) 7320–7329.
- [228] M. Ginibre, S. Akamatsu, G. Faivre, Experimental determination of the stability diagram of a lamellar eutectic growth front, *Phys. Rev. E* 56 (1997) 780–796.
- [229] G. Faivre, J. Mergy, Dynamical wavelength selection by tilt domains in thin-film lamellar eutectic growth, *Phys. Rev. A* 46 (1992) 963–972.
- [230] C. Caroli, G. Faivre, Lamellar eutectic growth: A discussion of the question of pattern selection, in: *Solid State Phenomena*, volume 42, Trans Tech Publ, 1995, pp. 1–10.
- [231] G. Faivre, Morphological instabilities of lamellar eutectic growth fronts: a survey of recent experimental and numerical results 166 (1996) 29–39.
- [232] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, Experimental evidence for a zigzag bifurcation in bulk lamellar eutectic growth 93 (2004) 175701.
- [233] S. Bottin-Rousseau, M. Perrut, C. Picard, S. Akamatsu, G. Faivre, An experimental method for the in situ observation of eutectic growth patterns in bulk samples of transparent alloys 306 (2007) 465–472.
- [234] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, M. Şerefoglu, G. Faivre, Lamellar eutectic growth with anisotropic interphase boundaries: Experimental study using the rotating directional solidification method 60 (2012) 3206 – 3214.
- [235] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, S. Ghosh, M. Plapp, Lamellar eutectic growth with anisotropic interphase boundaries 84 (2015) 012083.
- [236] S. Rex, B. Böttger, V. Witusiewicz, U. Hecht, Transient eutectic solidification in In–Bi–Sn: Two-dimensional experiments and numerical simulation 413–414 (2005) 249 – 254. International Conference on Advances in Solidification Processes.
- [237] M. Apel, B. Boettger, H. Diepers, I. Steinbach, 2D and 3D phase-field simulations of lamella and fibrous eutectic growth 237–239, Part 1 (2002) 154 – 158. The thirteenth international conference on Crystal Growth in conjunction with the eleventh international conference on Vapor Growth and Epitaxy.
- [238] S. Ghosh, A. Choudhury, M. Plapp, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, S. Akamatsu, Interphase anisotropy effects on lamellar eutectics: A numerical study 91 (2015) 022407.
- [239] S. Ghosh, M. Plapp, Influence of interphase anisotropy on lamellar eutectic growth patterns 68 (2015) 1235–1238.
- [240] K. A. Jackson, J. D. Hunt, Lamellar and rod eutectic growth 236 (1966) 1129–1142.
- [241] S. Ghosh, Effects of solid-solid boundary anisotropy on directional solidification microstructures, 2015.
- [242] M. Apel, B. Böttger, V. Witusiewicz, U. Hecht, I. Steinbach, Lamellar pattern formation during 2D-directional solidification of ternary eutectic alloys (2004) 271–279.

- [243] J. Hötzer, P. Steinmetz, M. Jainta, S. Schulz, M. Kellner, B. Nestler, A. Genau, A. Dennstedt, M. Bauer, H. Köstler, U. Rüde, Phase-field simulations of spiral growth during directional ternary eutectic solidification 106 (2016) 249 – 259.
- [244] M. Ruggiero, J. Rutter, Origin of microstructure in the 332 K eutectic of the Bi–In–Sn system 13 (1997) 5–11.
- [245] D. Lewis, S. Allen, M. Notis, A. Scotch, Determination of the eutectic structure in the Ag–Cu–Sn system 31 (2002) 161–167.
- [246] U. Böyük, N. Marasli, H. Kaya, E. Cadirli, K. Keslioglu, Directional solidification of Al–Cu–Ag alloy 95 (2009) 923–932.
- [247] B. Zhou, L. Froyen, Combined Two- and Three-Dimensional (2D and 3D) Characterization of Directionally Solidified Al-Cu-Ag-Mg Quaternary Eutectic, Metallography, Microstructure, and Analysis 3 (2014) 164–173.
- [248] P. R. Sahm, M. Lorenz, Strongly coupled growth in faceted-nonfaceted eutectics of the monovariant type 7 (1972) 793–806.
- [249] M. Rinaldi, R. Sharp, M. Flemings, Growth of ternary composites from the melt: Part ii, Metallurgical Transactions 3 (1972) 3139–3148.
- [250] P. Fehrenbach, H. Kerr, P. Niessen, Unidirectional solidification of monovariant eutectic Cu–Mg–Ni alloys: I. planar interface stability criterion, Journal of Crystal Growth 16 (1972) 209–214.
- [251] P. J. Fehrenbach, H. W. Kerr, P. Niessen, Unidirectional solidification of monovariant Cu–Ni–Mg eutectic alloys II. microstructures and properties 18 (1973) 151–158.
- [252] J. Holder, B. Oliver, The directional solidification of Pb–Sn–Cd alloys 5 (1974) 2423–2437.
- [253] T. Himemiya, T. Umeda, Three-phase planar eutectic growth models for a ternary eutectic system 40 (1999) 665–674.
- [254] I. Sargin, Invariant and univariant eutectic solidification in ternary alloys, 2015.
- [255] S. Engin, U. Böyük, N. Marasli, Determination of solid–liquid interfacial energy for a solid sn in equilibrium with a Sn–Ag–Zn eutectic liquid 11 (2011) 1060 – 1066.
- [256] M. Ruggiero, J. Rutter, Microstructure of Bi–Cd–Sn ternary eutectic 8 (1992) 523–530.
- [257] M. Ruggiero, J. Rutter, Origin of microstructure in 350 K eutectic of Bi–In–Sn ternary system 11 (1995) 136–142.
- [258] M. Ruggiero, J. Rutter, Microstructure of Bi–Cd–Pb ternary eutectic 12 (1996) 7–11.
- [259] M. Ruggiero, J. Rutter, Formation of microstructure in the Cd–In–Sn ternary eutectic 14 (1998) 177–181.
- [260] M. Ruggiero, J. Rutter, Formation of microstructure during solidification of Bi–Pb–Sn ternary eutectic 15 (1999) 1110–1114.
- [261] K. Elder, F. Drolet, J. Kosterlitz, M. Grant, Stochastic eutectic growth 72 (1994) 677.

- [262] F. Drolet, K. Elder, M. Grant, J. Kosterlitz, Phase-field modeling of eutectic growth 61 (2000) 6705.
- [263] B. Nestler, A. Wheeler, Phase-field modeling of multi-phase solidification 147 (2002) 230–233.
- [264] B. Nestler, A. Wheeler, H. Garcke, Modelling of microstructure formation and interface dynamics 26 (2003) 111–119.
- [265] J. Green, P. Jimack, A. Mullis, Phase field analysis of eutectic breakdown 38 (2007) 1426–1432.
- [266] J. Kundin, E. Pogorelov, H. Emmerich, Phase-field modeling of the microstructure evolution and heterogeneous nucleation in solidifying ternary Al–Cu–Ni alloys 83 (2015) 448 – 459.
- [267] A. Parisi, M. Plapp, S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, M. Perrut, G. Faivre, Three-dimensional phase-field simulations of eutectic solidification and comparison to in situ experimental observations (2005).
- [268] A. Parisi, M. Plapp, Defects and multistability in eutectic solidification patterns 90 (2010) 26010.
- [269] M. Perrut, A. Parisi, S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, M. Plapp, Role of transverse temperature gradients in the generation of lamellar eutectic solidification patterns 58 (2010) 1761–1769.
- [270] A. Choudhury, M. Plapp, B. Nestler, Theoretical and numerical study of lamellar eutectic three-phase growth in ternary alloys 83 (2011) 051608.
- [271] Y. C. Yabansu, P. Steinmetz, J. Hötzter, S. R. Kalidindi, B. Nestler, Extraction of reduced-order process-structure linkages from phase-field simulations, Acta Materialia 124 (2017) 182–194.
- [272] J. Hötzter, P. Steinmetz, M. Kellner, B. Nestler, Large-scale phase-field simulations of directional solidified ternary eutectics using high-performance computing, in: W. E. Nagel, D. H. Kröner, M. M. Resch (Eds.), High Performance Computing in Science and Engineering '16: Transactions of the High Performance Computing Center, Stuttgart (HLRS) 2016, Springer, 2016. JH,MK,PS are equal authors.
- [273] D. Lewis, J. Warren, W. Boettinger, T. Pusztai, L. Gránásy, Phase-field models for eutectic solidification 56 (2004) 34–39.
- [274] W. W. Mullins, R. F. Sekerka, Morphological stability of a particle growing by diffusion or heat flow 34 (1963) 323–329.
- [275] R. Sekerka, A Stability Function for Explicit Evaluation of the Mullins-Sekerka Interface Stability Criterion 36 (1965) 264–268.
- [276] R. Sekerka, Morphological stability 3 (1968) 71–81.
- [277] S. Akamatsu, T. Ihle, Similarity law for the tilt angle of dendrites in directional solidification of non-axially-oriented crystals 56 (1997) 4479.

- [278] S. Akamatsu, G. Faivre, Anisotropy-driven dynamics of cellular fronts in directional solidification in thin samples 58 (1998) 3302.
- [279] S. Akamatsu, G. Faivre, Traveling waves, two-phase fingers, and eutectic colonies in thin-sample directional solidification of a ternary eutectic alloy 61 (2000) 3757.
- [280] S. Akamatsu, G. Faivre, S. Moulinet, The formation of lamellar-eutectic grains in thin samples 32 (2001) 2039–2048.
- [281] W. Losert, D. Stillman, H. Cummins, P. Kopczyński, W. Rappel, A. Karma, Selection of doublet cellular patterns in directional solidification through spatially periodic perturbations 58 (1998) 7492.
- [282] C. Lan, C. Shih, W. Hsu, Long-time scale morphological dynamics near the onset of instability during directional solidification of an alloy 264 (2004) 379–384.
- [283] C. Lan, C. Shih, M. Lee, Quantitative phase field simulation of deep cells in directional solidification of an alloy 53 (2005) 2285–2294.
- [284] M. Durand-Charre, F. Durand, Effects of growth rate on the morphology of monovariant eutectics: MnSb–(Sb, Bi) and MnSb–(Sb, Sn) 13 (1972) 747–750.
- [285] S. Raj, I. Locci, Microstructural characterization of a directionally-solidified ni-33 (at.%) Al-31Cr-3Mo eutectic alloy as a function of withdrawal rate 9 (2001) 217–227.
- [286] U. Hecht, V. Witusiewicz, A. Drevermann, Coupled growth of Al-Al₂Cu eutectics in Al–Cu–Ag alloys 27 (2012) 012029.
- [287] T. Himemiya, Growth models of two-phase eutectic cell in a ternary eutectic system: a phase selection map 40 (1999) 675–684.
- [288] M. Plapp, A. Karma, Eutectic colony formation: A stability analysis 60 (1999) 6865.
- [289] W. Boettinger, J. Warren, Simulation of the cell to plane front transition during directional solidification at high velocity 200 (1999) 583–591.
- [290] M. Plapp, A. Karma, Eutectic colony formation: A phase-field study 66 (2002) 061608.
- [291] A. Lahiri, A. Choudhury, Effect of surface energy anisotropy on the stability of growth fronts in multiphase alloys 68 (2015) 1053–1057.
- [292] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, E. A. Brener, Scaling theory of two-phase dendritic growth in undercooled ternary melts 112 (2014) 105502.
- [293] T. Pusztai, L. Rátkai, A. Szállás, L. Gránásy, Spiraling eutectic dendrites 87 (2013) 032401.
- [294] L. Rátkai, A. Szállás, T. Pusztai, T. Mohri, L. Gránásy, Ternary eutectic dendrites: Pattern formation and scaling properties 142 (2015) 154501.
- [295] S. Akamatsu, M. Plapp, G. Faivre, A. Karma, Pattern stability and trijunction motion in eutectic solidification 66 (2002) 030501.
- [296] S. Akamatsu, G. Faivre, M. Plapp, A. Karma, Overstability of lamellar eutectic growth below the minimum-undercooling spacing 35 (2004) 1815–1828.

- [297] J. De Wilde, L. Froyen, V. T. Witusiewicz, U. Hecht, Two-phase planar and regular lamellar coupled growth along the univariant eutectic reaction in ternary alloys: An analytical approach and application to the Al–Cu–Ag system 97 (2005) –.
- [298] J. De Wilde, Multicomponent, multiphase solidification: microstructure formation during the ternary eutectic reaction, 2005.
- [299] S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, Determination of the jackson–hunt constants of the In–In₂Bi eutectic alloy based on in situ observation of its solidification dynamics 59 (2011) 7586 – 7591.
- [300] J. A. Dantzig, M. Rappaz, Solidification, EPFL press, 2009.
- [301] R. Trivedi, P. Magnin, W. Kurz, Theory of eutectic growth under rapid solidification conditions, *Acta Metallurgica* 35 (1987) 971–980.
- [302] L. Zheng, D. Larson Jr, H. Zhang, Revised form of jackson–hunt theory: application to directional solidification of MnBi/Bi eutectics, *Journal of crystal growth* 209 (2000) 110–121.
- [303] A. Ludwig, S. Leibbrandt, Generalised ‘Jackson–Hunt’ model for eutectic solidification at low and large Peclet numbers and any binary eutectic phase diagram, *Materials Science and Engineering: A* 375 (2004) 540–546.
- [304] K. Ankit, A. Choudhury, C. Qin, S. Schulz, M. McDaniel, B. Nestler, Theoretical and numerical study of lamellar eutectoid growth influenced by volume diffusion, *Acta Materialia* 61 (2013) 4245 – 4253.
- [305] T. Himemiya, Three-phase planar eutectic growth models with rod + hexagon or semi-regular structure for a ternary eutectic system, *Journal of Wakkanai Hokuseigakuen Junior College* 13 (1999) 77–102.
- [306] A. V. Catalina, P. W. Voorhees, R. K. Huff, A. L. Genau, A model for eutectic growth in multicomponent alloys 84 (2015) 012085.
- [307] M. Perrut, S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, Long-time dynamics of the directional solidification of rodlike eutectics 79 (2009) 032602.
- [308] M. Perrut, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, S. Akamatsu, Dynamic instabilities of rod-like eutectic growth patterns: A real-time study 61 (2013) 6802–6808.
- [309] S. Kalidindi, Hierarchical Materials Informatics: Novel Analytics for Materials Data, 1 ed., Butterworth-Heinemann, 2015.
- [310] A. Choudhury, Y. C. Yabansu, S. R. Kalidindi, A. Dennstedt, Quantification and classification of microstructures in ternary eutectic alloys using 2-point spatial correlations and principal component analyses, *Acta Materialia* 110 (2016) 131–141.
- [311] A. Choudhury, Quantitative phase-field model for phase transformations in multi-component alloys (Schriftenreihe des Instituts für Angewandte Materialien, Karlsruher Institut für Technologie), KIT Scientific Publishing, 2013.
- [312] B. Stinner, Derivation and Analysis of a Phase Field Model for Alloy Solidification, 2005.

- [313] B. Sundman, B. Jansson, J.-O. Andersson, The thermo-calc databank system, *Calphad* 9 (1985) 153–190.
- [314] H. L. Lukas, S. G. Fries, B. Sundman, Computational thermodynamics: the Calphad method, volume 131, Cambridge university press Cambridge, 2007.
- [315] D. Schneider, M. Selzer, J. Bette, I. Rementeria, A. Vondrouš, M. J. Hoffmann, B. Nestler, Phase-field modeling of diffusion coupled crack propagation processes 16 (2014) 142–146.
- [316] J. Ettrich, Fluid Flow and Heat Transfer in Cellular Solids, volume 39, KIT Scientific Publishing, 2014.
- [317] D. Schneider, O. Tschukin, A. Choudhury, M. Selzer, T. Böhlke, B. Nestler, Phase-field elasticity model based on mechanical jump conditions (2015) 1–15.
- [318] D. Schneider, S. Schmid, M. Selzer, T. Böhlke, B. Nestler, Small strain elasto-plastic multiphase-field model 55 (2015) 27–35.
- [319] M. Ben Said, M. Selzer, B. Nestler, D. Braun, C. Greiner, H. Garcke, A phase-field approach for wetting phenomena of multiphase droplets on solid surfaces 30 (2014) 4033–4039.
- [320] F. Weyer, M. Said, J. Hötzer, M. Berghoff, L. Dreesen, B. Nestler, N. Vandewalle, Compound droplets on fibers, *Langmuir* 31 (2015) 7799–7805. PMID: 26090699.
- [321] M. Berghoff, B. Nestler, Phase field crystal modeling of ternary solidification microstructures 4 (2015) 46–58.
- [322] V. Kumar, Z. Z. Fang, P. C. Fife, Phase field simulations of grain growth during sintering of two unequal-sized particles 528 (2010) 254–259.
- [323] A. Vondrouš, M. Selzer, J. Hötzer, B. Nestler, Parallel computing for phase-field models (2013) 1094342013490972–.
- [324] J. Hötzer, O. Tschukin, M. Said, M. Berghoff, M. Jainta, G. Barthelemy, N. Smorchkov, D. Schneider, M. Selzer, B. Nestler, Calibration of a multi-phase field model with quantitative angle measurement 51 (2016) 1788–1797.
- [325] C. Godenschwager, F. Schornbaum, M. Bauer, H. Köstler, U. Rüde, A framework for hybrid parallel flow simulations with a trillion cells in complex geometries, in: Proceedings of SC13: International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis, ACM, 2013, p. 35.
- [326] Z. Bi, R. Sekerka, Phase field modeling of shallow cells during directional solidification of a binary alloy 237 (2002) 138–143.
- [327] P. Steinmetz, M. Kellner, J. Hötzer, B. Nestler, Quantitative Comparison of Ternary Eutectic Phase-Field Simulations with Analytical 3D Jackson-Hunt Approaches, eingereicht bei Metallurgical and Materials Transactions B (2017).
- [328] J. Hötzer, Massiv parallele und großskalige Phasenfeldsimulationen zur Untersuchung der Mikrostruktorentwicklung, 2017.
- [329] J. E. Rodríguez, I. Cruz, E. Vergés, D. Ayala, A connected-component-labeling-based approach to virtual porosimetry, *Graphical models* 73 (2011) 296–310.

- [330] J. MacSleyne, J. Simmons, M. D. Graef, On the use of 2-D moment invariants for the automated classification of particle shapes 56 (2008) 427 – 437.
- [331] L. Bai, D. Breen, Calculating center of mass in an unbounded 2D environment 13 (2008) 53–60.
- [332] A. Choudhury, B. Nestler, Phase-field modeling of ternary solidification in the AlCuAg alloy, unpublished.
- [333] S. R. Niezgoda, Y. C. Yabansu, S. R. Kalidindi, Understanding and visualizing microstructure and microstructure variance as a stochastic process, *Acta Materialia* 59 (2011) 6387–6400.
- [334] S. R. Niezgoda, A. K. Kanjarla, S. R. Kalidindi, Novel microstructure quantification framework for databasing, visualization, and analysis of microstructure data, *Integrating Materials and Manufacturing Innovation* 2 (2013) 1–27.
- [335] A. Çeçen, T. Fast, E. C. Kumbur, S. R. Kalidindi, A data-driven approach to establishing microstructure–property relationships in porous transport layers of polymer electrolyte fuel cells, *Journal of Power Sources* 245 (2014) 144–153.
- [336] A. Gupta, A. Cecen, S. Goyal, A. K. Singh, S. R. Kalidindi, Structure–property linkages using a data science approach: Application to a non-metallic inclusion/steel composite system, *Acta Materialia* 91 (2015) 239–254.
- [337] Y. C. Yabansu, D. K. Patel, S. R. Kalidindi, Calibrated localization relationships for elastic response of polycrystalline aggregates, *Acta Materialia* 81 (2014) 151–160.
- [338] T. Fast, S. R. Niezgoda, S. R. Kalidindi, A new framework for computationally efficient structure–structure evolution linkages to facilitate high-fidelity scale bridging in multi-scale materials models, *Acta Materialia* 59 (2011) 699–707.
- [339] S. R. Niezgoda, D. M. Turner, D. T. Fullwood, S. R. Kalidindi, Optimized structure based representative volume element sets reflecting the ensemble-averaged 2-point statistics, *Acta Materialia* 58 (2010) 4432–4445.
- [340] Y. C. Yabansu, S. R. Kalidindi, Representation and calibration of elastic localization kernels for a broad class of cubic polycrystals, *Acta Materialia* 94 (2015) 26–35.
- [341] D. T. Fullwood, S. R. Niezgoda, B. L. Adams, S. R. Kalidindi, Microstructure sensitive design for performance optimization, *Progress in Materials Science* 55 (2010) 477–562.
- [342] D. T. Fullwood, S. R. Niezgoda, S. R. Kalidindi, Microstructure reconstructions from 2-point statistics using phase-recovery algorithms, *Acta Materialia* 56 (2008) 942–948.
- [343] S. Niezgoda, D. Fullwood, S. Kalidindi, Delineation of the space of 2-point correlations in a composite material system, *Acta Materialia* 56 (2008) 5285–5292.
- [344] J. Bortz, C. Schuster, *Statistik für Human- und Sozialwissenschaftler : mit ... 163 Tabellen*, Springer-Lehrbuch, 7., vollst. überarb. und erw. aufl. ed., Springer, Berlin, 2010.
- [345] K. Überla, *Faktorenanalyse : eine systematische Einführung für Psychologen, Mediziner, Wirtschafts- und Sozialwissenschaftler*, 2. aufl. ed., Springer, Berlin [u.a.], 1971.

- [346] M. Eid, M. Gollwitzer, M. Schmitt, Statistik und Forschungsmethoden : Lehrbuch; mit Online-Materialien, 3., korr. aufl. ed., Beltz, Weinheim, 2013.
- [347] M. A. Ruggiero, J. W. Rutter, Origin of microstructure in the 332 K eutectic of the Bi–In–Sn system 13 (1997) 5–11.
- [348] S. Bottin-Rousseau, M. Şerefoglu, S. Yüçetürk, G. Faivre, S. Akamatsu, Stability of three-phase ternary-eutectic growth patterns in thin sample, *Acta Materialia* 109 (2016) 259–266.
- [349] G. Faivre, S. D. Cheveigne, C. Guthmann, P. Kurowski, Solitary tilt waves in thin lamellar eutectics 9 (1989) 779.
- [350] U. Hecht, L. Gránásy, T. Pusztai, B. Böttger, M. Apel, V. Witusiewicz, L. Ratke, J. De Wilde, L. Froyen, D. Camel, et al., Multiphase solidification in multicomponent alloys 46 (2004) 1–49.
- [351] D. McCartney, R. Jordan, J. Hunt, The structures expected in a simple ternary eutectic system: Part II. the Al–Ag–Cu ternary system 11 (1980) 1251–1257.
- [352] E. L. Cussler, Diffusion: mass transfer in fluid systems, Cambridge university press, 2009.
- [353] A. Bulla, C. Carreno-Bodensiek, B. Pustal, R. Berger, A. Bührig-Polaczek, A. Ludwig, Determination of the solid-liquid interface energy in the Al–Cu–Ag system 38 (2007) 1956–1964.
- [354] D. M. Herlach, R. Kirchheim (Eds.), Phase Transformations in Multicomponent Melts, 1. auflage ed., Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2008.
- [355] K. B. Kim, J. Liu, N. Marasli, J. D. Hunt, The effect of different atomic volumes in the three phases during lamellar eutectic growth. A comparison of experiment and theory in the Al-Al₂Cu system 43 (1995) 2143.
- [356] R. Hill, Elastic properties of reinforced solids: some theoretical principles, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 11 (1963) 357–372.
- [357] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, D. Jeulin, Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach, *International Journal of solids and structures* 40 (2003) 3647–3679.
- [358] S. M. Qidwai, D. M. Turner, S. R. Niezgoda, A. C. Lewis, A. B. Geltmacher, D. J. Rowenhorst, S. R. Kalidindi, Estimating the response of polycrystalline materials using sets of weighted statistical volume elements, *Acta Materialia* 60 (2012) 5284–5299.
- [359] X. Yin, W. Chen, A. To, C. McVeigh, W. K. Liu, Statistical volume element method for predicting microstructure–constitutive property relations, *Computer methods in applied mechanics and engineering* 197 (2008) 3516–3529.
- [360] M. Ostoja-Starzewski, Material spatial randomness: From statistical to representative volume element, *Probabilistic Engineering Mechanics* 21 (2006) 112–132.

- [361] D. Brands, D. Balzani, J. Schröder, On the construction of statistically similar representative volume elements based on the lineal-path function, *PAMM* 10 (2010) 399–400.
- [362] S. R. Kalidindi, Data science and cyberinfrastructure: critical enablers for accelerated development of hierarchical materials, *International Materials Reviews* 60 (2015) 150–168.
- [363] S. R. Kalidindi, J. A. Gomberg, Z. T. Trautt, C. A. Becker, Application of data science tools to quantify and distinguish between structures and models in molecular dynamics datasets, *Nanotechnology* 26 (2015) 344006.
- [364] N. N. Greenwood, A. Earnshaw, *Chemie der Elemente*, John Wiley & Sons Australia, Limited, Hoboken, 1990.
- [365] B. Feuerbacher, H. Stoewer, *Utilization of space: today and tomorrow*, volume 211, Springer Science & Business Media, 2006.
- [366] R. Rojas, T. Takaki, M. Ohno, A phase-field-lattice boltzmann method for modeling motion and growth of a dendrite for binary alloy solidification in the presence of melt convection, *Journal of Computational Physics* 298 (2015) 29–40.
- [367] T. Takaki, R. Rojas, M. Ohno, T. Shimokawabe, T. Aoki, GPU phase-field lattice boltzmann simulations of growth and motion of a binary alloy dendrite, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 84 (2015) 012066.
- [368] D. Şopu, C. Soyarslan, B. Sarac, S. Bargmann, M. Stoica, J. Eckert, Structure-property relationships in nanoporous metallic glasses, *Acta Materialia* 106 (2016) 199–207.
- [369] G. Pia, F. Delogu, Coarsening of nanoporous au: Relationship between structure and mechanical properties, *Acta Materialia* 99 (2015) 29–38.
- [370] D. Li, H. Garmestani, S. Ahzi, Processing path optimization to achieve desired texture in polycrystalline materials, *Acta materialia* 55 (2007) 647–654.
- [371] C.-N. Li, F.-Q. Ji, G. Yuan, J. Kang, R. Misra, G.-D. Wang, The impact of thermo-mechanical controlled processing on structure-property relationship and strain hardening behavior in dual-phase steels, *Materials Science and Engineering: A* 662 (2016) 100–110.
- [372] R. Liu, Y. C. Yabansu, A. Agrawal, S. R. Kalidindi, A. N. Choudhary, Machine learning approaches for elastic localization linkages in high-contrast composite materials, *Integrating Materials and Manufacturing Innovation* 4 (2015) 1–17.
- [373] B. S. Fromm, K. Chang, D. L. McDowell, L.-Q. Chen, H. Garmestani, Linking phase-field and finite-element modeling for process–structure–property relations of a Ni-base superalloy, *Acta Materialia* 60 (2012) 5984–5999.
- [374] S. R. Kalidindi, *Hierarchical Materials Informatics: Novel Analytics for Materials Data*, Elsevier, 2015.
- [375] J. B. Shaffer, M. Knezevic, S. R. Kalidindi, Building texture evolution networks for deformation processing of polycrystalline fcc metals using spectral approaches: applications to process design for targeted performance, *International Journal of Plasticity* 26 (2010) 1183–1194.

- [376] G. Proust, S. R. Kalidindi, Procedures for construction of anisotropic elastic–plastic property closures for face-centered cubic polycrystals using first-order bounding relations, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 54 (2006) 1744–1762.
- [377] M. Knezevic, S. R. Kalidindi, R. K. Mishra, Delineation of first-order closures for plastic properties requiring explicit consideration of strain hardening and crystallographic texture evolution, *International Journal of Plasticity* 24 (2008) 327–342.
- [378] S. Schulz, Phase-field simulations of multi-component solidification and coarsening based on thermodynamic datasets, 2016. URL: <http://dx.doi.org/10.5445/IR/1000056199>. doi:10.5445/IR/1000056199.
- [379] S. N. Enugala, A. Kumar, B. Nestler, On the Extension of Jackson-Hunt analysis for the case of curved interfaces in stoichiometric systems. Application to NiZr-NiZr₂ alloys., unpubliziert (2017).
- [380] M. Kellner, I. Sprenger, P. Steinmetz, J. Hötzer, B. Nestler, M. Heilmaier, Phase-field simulation of the microstructure evolution in the eutectic nial-34cr system, *Computational Materials Science* 128 (2017) 379 – 387.

A. Anhang

A.1. Entdimensionalisierung

Im Folgenden wird die Entdimensionalisierung der in Kapitel 3 vorgestellten Gleichungen gezeigt.

Für die Entdimensionalisierung werden folgende Skalen verwendet:

- Energie: Einheit J (in SI-Einheiten: $1 J = 1 Nm = 1 \frac{kg m^2}{s^2}$)
- Länge: Einheit m
- Zeit: Einheit s
- Temperatur: Einheit K
- molares Volumen: Einheit $V_m = \frac{m^3}{mol}$

Basierend auf diesen Grundskalen haben die Parameter in den Simulationen folgende Einheiten:

- Großkanonisches Potential $\Psi = J$
- spezifisches Großkanonisches Potential $\Psi = \frac{J}{V_m}$
- Freie Energie $F = J$
- spezifische Freie Energie $f = \frac{J}{V_m}$
- chemisches Potential $\hat{\mu} = \frac{J}{mol}$
- spezifisches chemisches Potential $\mu = \frac{J}{V_m}$
- Stoffmenge $N = mol$
- Skalierungsparameter für die Grenzfläche: $\epsilon = m$
- Temperatur $T = K$
- Gradientenergiedichte $a = \frac{J m}{V_m}$
- Potentialterm $\omega = \frac{J m}{V_m}$

- kinetischer Koeffizient $\tau = \frac{J s}{V_m m}$
- Zeit $t = s$
- Diffusionskoeffizient $D_{\hat{\alpha}} = \frac{m^2}{s}$
- Oberflächenenergie: $\gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}} = \frac{J m}{V_m}$
- höherer Ordnungsterm: $\gamma_{\hat{\alpha}\hat{\beta}\hat{\gamma}} = \frac{J m}{V_m}$

Im Folgenden wird die Korrektheit der Entdimensionalisierung mit Hilfe der verwendeten Gleichungen gezeigt.

Großkanonisches Potential Funktional

$$\underbrace{\Psi}_{J} = \underbrace{F}_{J} - \underbrace{\hat{\mu}}_{J} \underbrace{\frac{N}{mol}}_{mol} \quad (A.1)$$

$$\underbrace{\frac{\psi}{V_m}}_{J} = \underbrace{\frac{f}{V_m}}_{J} - \underbrace{\frac{\mu}{V_m}}_{J} c \quad (A.2)$$

$$\underbrace{\Psi}_{J} = \int_{\Omega} \left(\underbrace{\frac{\epsilon}{m}}_{\frac{1}{V_m}} \underbrace{\frac{a}{Jm}}_{\frac{1}{m^2}} + \underbrace{\frac{1}{\epsilon}}_{\frac{1}{m}} \underbrace{\frac{\omega}{Jm}}_{\frac{1}{V_m}} \right) + \underbrace{\frac{\psi}{V_m}}_{J} \underbrace{d\Omega}_{V_m} \quad (A.3)$$

Evolutionsgleichung von ϕ

$$\underbrace{\frac{\tau}{J_s}}_{V_m m} \underbrace{\frac{\epsilon}{m}}_{\frac{1}{s}} \underbrace{\frac{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}{\partial t}}_{J} = - \left(\underbrace{\frac{\epsilon}{m}}_{\frac{1}{V_m m}} \left(\underbrace{\frac{\partial a}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}}_{J} - \underbrace{\nabla}_{\frac{1}{m}} \cdot \underbrace{\frac{\partial a}{\partial \nabla \phi_{\hat{\alpha}}}}_{\frac{1}{V_m}} \right) + \underbrace{\frac{1}{\epsilon}}_{\frac{1}{m}} \underbrace{\frac{\partial \omega}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}}_{\frac{Jm}{V_m}} + \underbrace{\frac{\partial \psi}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}}_{\frac{J}{V_m}} - \lambda \right) \quad (A.4)$$

$$\lambda = \frac{1}{N} \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \epsilon \left(\frac{\partial a}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} - \nabla \cdot \frac{\partial a}{\partial \nabla \phi_{\hat{\alpha}}} \right) + \frac{1}{\epsilon} \frac{\partial \omega}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} + \frac{\partial \psi}{\partial \phi_{\hat{\alpha}}} \quad (A.5)$$

Evolutionsgleichung von μ

$$\underbrace{\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t} \frac{1}{\frac{J}{V_m} s}}_{\frac{J}{V_m}} = \left[\underbrace{\sum_{\hat{\alpha}=1}^N h_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}) \underbrace{\left(\frac{\partial \mathbf{c}_{\hat{\alpha}}}{\partial \boldsymbol{\mu}} \right)}_{\frac{V_m}{J}}}_{\frac{J}{V_m}} \right]^{-1} \left(\underbrace{\nabla \cdot \left(\frac{\underbrace{\mathbf{M}}_{\frac{1}{m}}}{m^2 V_m} \frac{\nabla \boldsymbol{\mu}}{s J} - \frac{\underbrace{\mathbf{J}_{at}}_{\frac{m}{s}}}{V_m m} \right)}_{\frac{m}{s}} - \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \mathbf{c}_{\hat{\alpha}} \underbrace{\frac{\partial h_{\hat{\alpha}}}{\partial t}}_{\frac{1}{s}} - \sum_{\hat{\alpha}=1}^N h_{\hat{\alpha}} \underbrace{\left(\frac{\partial \mathbf{c}_{\hat{\alpha}}}{\partial T} \right) \frac{\partial T}{\partial t}}_{\frac{K}{s}} \right) \quad (\text{A.6})$$

$$\underbrace{\mathbf{M}}_{\frac{m^2 V_m}{s J}} = \sum_{\alpha=1}^N \underbrace{\mathbf{D}_{\alpha}}_{\frac{m^2}{s}} \underbrace{\frac{\partial \mathbf{c}_{\alpha}(\boldsymbol{\mu}, T)}{\partial \boldsymbol{\mu}}}_{\frac{V_m}{J}} h_{\alpha}(\boldsymbol{\Phi}) \quad (\text{A.7})$$

$$\underbrace{\mathbf{J}_{at}}_{\frac{m}{s}} = \underbrace{\frac{\pi \epsilon}{4} \frac{1}{m}}_{\frac{1}{s}} \sum_{\hat{\alpha}=1}^N \underset{(\hat{\alpha} \neq liq)}{\underbrace{\frac{g_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\Phi}) h_{liq}(\boldsymbol{\Phi})}{\sqrt{\phi_{\hat{\alpha}} \phi_{liq}}}}_{\frac{1}{s}}} \underbrace{\frac{\partial \phi_{\hat{\alpha}}}{\partial t}}_{\frac{1}{s}} \left(\frac{\nabla \phi_{\hat{\alpha}}}{|\nabla \phi_{\hat{\alpha}}|} \cdot \frac{\nabla \phi_{liq}}{|\nabla \phi_{liq}|} \right) \left((\mathbf{c}_{liq}(\boldsymbol{\mu}) - \mathbf{c}_{\hat{\alpha}}(\boldsymbol{\mu})) \otimes \frac{\nabla \phi_{\hat{\alpha}}}{|\nabla \phi_{\hat{\alpha}}|} \right) \quad (\text{A.8})$$

$$\mathbf{c} = \underbrace{\frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\mu}}}_{\frac{J}{V_m} \frac{V_m}{J}} \quad (\text{A.9})$$

A.2. Eigene Publikationen

- **Steinmetz, P.**, Yabansu, Y. C., Hötzer, J., Jainta, M., Nestler, B. und Kalidindi, S. R. (2016). Analytics for microstructure datasets produced by phase-field simulations. *Acta Materialia*, 103, 192-203.
- **Steinmetz, P.**, Hötzer, J., Kellner, M., Dennstedt, A. und Nestler, B. (2016). Large-scale phase-field simulations of ternary eutectic microstructure evolution. *Computational Materials Science*, 117, 205-214.
- **Steinmetz, P.**, Kellner, M., Hötzer, J., Dennstedt, A. und Nestler, B. (2016). Phase-field study of the pattern formation in Al–Ag–Cu under the influence of the melt concentration. *Computational Materials Science*, 121, 6-13.
- **Steinmetz, P.**, Kellner, M., Hötzer, J. und Nestler, B. (2016). Quantitative Comparison of Ternary Eutectic Phase-Field Simulations with Analytical 3D Jackson-Hunt Approaches eingereicht bei Metallurgical and Materials Transactions B
- **Steinmetz, P.***, Hötzer, J.*., Dennsted, A.*., Serr, C. und Nestler, B. (2017). Three-dimensional investigation of the microstructure rearrangement during ternary eutectic directional solidification of Al-Ag-Cu eingereicht bei Acta Materialia * = geteilte Autorenschaft
- **Steinmetz, P.**, Hötzer, J. und Nestler, B., (2015), Charakterisierung mehrkomponentiger Materialstrukturen durch den Einsatz von Höchstleistungsrechnern und Data Mining Konzepten, *Ingenieurspiegel*, 3/2015
- **Steinmetz, P.**, Kellner, M. und Nestler, B., (2017), Einfluss von richtungsabhängigen Grenzflächenenergien auf die gerichtete Erstarrung von Al-Ag-Cu, *Ingenieurspiegel*, 8/2017
- Hötzer, J.*., **Steinmetz, P.***, Dennstedt, A.*., Genau, A.*., Kellner, M., Sargin, I. und Nestler, B. (2017). Influence of growth velocity variations on the pattern formation during the ternary eutectic directional solidification of Al-Ag-Cu. angenommen bei Acta Materialia * = geteilte Autorenschaft
- Hötzer, J.*., Kellner, M.*., **Steinmetz, P.*** und Nestler, B. (2016). Applications of the phase-field method for the solidification of microstructures in multi-component systems. *Publication of the Indian Institute of Science*. 96.3 (2016): 235-256. * = geteilte Autorenschaft
- Hötzer, J.*., Kellner, M.*., **Steinmetz, P.***, Dietze, J. und Nestler, B., (2017), Large-scale phase-field simulations of directional solidified ternary eutectics using high-performance computing, *High Performance Computing in Science and Engineering '16: Transactions of the High Performance Computing Center, Stuttgart (HLRS) 2016* * = geteilte Autorenschaft
- Dargahi Noubary, K.*., Kellner, M.*., **Steinmetz, P.***, Hötzer, J.* und Nestler, B., (2017). Phase-field study on the effects of process and material parameters on the tilt angle during directional solidification of ternary eutectics. angenommen bei Computational Materials Science * = geteilte Autorenschaft

- Hötzer, J., **Steinmetz, P.**, Jainta, M., Schulz, S., Kellner, M., Nestler, B., Genau, A., Dennstedt, A., Bauer, M. und Rüde, U. (2016). Phase-field simulations of spiral growth during directional ternary eutectic solidification. *Acta Materialia*, 106, 249-259.
- Yabansu, Y., **Steinmetz, P.**, Hötzer, J., Kalidindi, S.R. und Nestler, N. (2016). Extraction of Reduced-Order Process-Structure Linkages from Phase-Field Simulations. *Acta Materialia*. 124 (2017): 182-194.
- Hötzer, J., Jainta, M., **Steinmetz, P.**, Nestler, B., Dennstedt, A., Genau, A., Bauer, M., Köstler, H. und Rüde, U. (2015). Large scale phase-field simulations of directional ternary eutectic solidification. *Acta Materialia*, 93, 194-204.
- Dennstedt, A., Helfen, L., **Steinmetz, P.**, Nestler, B. und Ratke, L. (2016). 3D Synchrotron Imaging of a Directionally Solidified Ternary Eutectic. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 47(3), 981-984.
- Bauer, M., Hötzer, J., Jainta, M., **Steinmetz, P.**, Berghoff, M., Schornbaum, F., Godenschwager, C., Köstler, H., Nestler, B. und Rüde, U. (2015, November). Massively parallel phase-field simulations for ternary eutectic directional solidification. In *Proceedings of the International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis* (p. 8). ACM.
- Hötzer, J., Jainta, M., Said, M. B., **Steinmetz, P.**, Berghoff, M. und Nestler, B. (2016). Application of Large-Scale Phase-Field Simulations in the Context of High-Performance Computing. In *High Performance Computing in Science and Engineering 15* (pp. 659-674). Springer International Publishing.
- Hötzer, J., Jainta, M., Bauer, M., **Steinmetz, P.**, Kellner, M., Köstler, H., Rüde, U. und Nestler, B., (2016), Study of complex microstructure evolution in ternary eutectic alloys with massive parallel large-scale phase-field simulations, *High Performance Computing in Science und Engineering - Garching/Munich 2016* (2016)
- Kellner, M., Sprenger, I., **Steinmetz, P.**, Hötzer, J., Nestler, B. und Heilmaier, M., (2016), Phase-field Simulation of the Microstructure Evolution in the Eutectic NiAl-34Cr System. *Computational Materials Science*, 128, 379-387
- Hötzer, J., Jainta, M., **Steinmetz, P.**, Dennstedt, A. und Nestler, B. (2015). Die Vielfalt der Musterbildung in Metallen-Großskalige Phasenfeldsimulationen zur gerichteten Erstarrung ternärer eutektischer Systeme. *Horizonte/Forschung an Fachhochschulen in Baden-Württemberg*, 10-13.
- Kellner, M., Hötzer, J., **Steinmetz, P.**, Dargahi Noubary, K., Kunz, W. und Nestler, B., (2017), Phase-field study of microstructure evolution in directionally solidified NiAl-34Cr during dynamic velocity changes. eingereicht bei *Proceedings of the 6th Decennial Conference on Solidification Processing*
- Hötzer, J., Reiter, A., Hierl, H., **Steinmetz, P.**, Selzer, M. und Nestler, B., (2017), The parallel multi-physics phase-field framework Pace3D. eingereicht bei *High Performance Computing in Science and Engineering 17*

A.3. Betreute studentische Arbeiten

- Jian He - Bachelorthesis - Charakterisierung eutektischer Gefügestrukturen aus Simulationsstudien für das System: Al-Cu-Ag
- Julian Mood - Bachelorthesis - Untersuchung des Einflusses der Oberflächenenergien bei der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika mit der Phasenfeld-Methode
- Daniel Stubenvoll - Bachelorthesis - Graphenbasierte Analyse für Phasenfeld-Simulationen mit gerichteter Erstarrung
- Johannes Dietze - Bachelorthesis - Gefügeentwicklung während der gerichteten Erstarrung ternärer Eutektika in Abhängigkeit der Erstarrungsgeschwindigkeit mit der Phasenfeldmethode
- Laura Promberger - Bachelorthesis - Hauptkomponentenanalyse von Phasenfeldsimulationen
- Markus Linnenberg - Bachelorthesis - Modellierung und Simulation eutektischer Kolonien im ideal binären und ternären System
- Laura Promberger - Projektarbeit - Erweiterung der Hauptkomponentenanalyse von Phasenfeldsimulationen auf 3D und der Verarbeitung von Simulationen mit mehr als 3 Phasenfeldern
- Benjamin Galinsky - Bachelorthesis -Modellierung und Simulation von Löslichkeitsänderungen in ternären Eutektika
- Henrik Hierl - Bachelorthesis - Optimierung eines Phasenfeld-Modells zur Ausnutzung moderner Hardware