

Ảnh hưởng của gradient nhiệt độ tới sự tiết pha trong kim loại lỏng Si-Ti-C

Effects of temperature gradient on precipitation in liquid Si-Ti-C

HÀ MINH TÂN^{1,*}, PHẠM MAI KHÁNH¹

¹ Viện Khoa học và Kỹ thuật Vật liệu, Trường Đại học Bách khoa Hà Nội, Số 1 Đại Cồ Việt, Hà Nội

*Email: tan.haminh@hust.edu.vn

Ngày nhận bài: 12/3/2023, Ngày duyệt đăng: 15/5/2023

TÓM TẮT

Cơ tính của hợp kim và chi tiết đúc phụ thuộc nhiều vào quá trình hình thành tổ chức tế vi. Phương pháp xử lý nhiệt ảnh hưởng trực tiếp đến kích thước hạt của tổ chức. Thông thường, khi hạt có kích thước càng nhỏ thì cơ tính đạt được càng tốt. Để tạo được hạt có kích thước nhỏ, phương pháp tôi được áp dụng phổ biến. Trong quá trình nguội, luôn tồn tại một gradient nhiệt độ trong vật đúc, có thể ảnh hưởng tới sự hình thành tổ chức. Nghiên cứu này tiến hành khảo sát sự ảnh hưởng của gradient nhiệt độ tới kích thước và hình thái của hạt. Kết quả cho thấy, ở gradient nhiệt độ thấp, tổ chức tạo thành có dạng cầu. Gradient nhiệt độ càng cao sẽ càng làm cho hạt bị biến dạng nhiều.

Từ khóa: gradient nhiệt độ, tổ chức, kích thước hạt, hình thái, tiết pha.

ABSTRACT

The mechanical properties of alloys and castings strongly depend on the formation of their microstructure. Heat treatment conditions have a directly effect on the grain size. Typically, smaller grain sizes result in improved mechanical properties. To achieve small grain sizes, a commonly applied method is rapid cooling, known as quenching. During the cooling process, there is always a temperature gradient within the casting, which can affect the formation of the microstructure. This study investigates the influence of temperature gradient on the size and morphology of the grains. The results show that at lower temperature gradients, the formed microstructure has a spherical shape. Increasing the temperature gradient leads to greater grain deformation.

Keywords: temperature gradient, microstructure, grain size, morphology, precipitation.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Trong công nghệ đúc và thiết kế hợp kim, quá trình xử lý nhiệt là tối quan trọng trong việc hình thành các tổ chức tế vi trong vật đúc, từ đó ảnh hưởng trực tiếp tới cơ tính của vật đúc và hợp kim. Đối với một hợp kim có thành phần nhất định, tốc độ nguội và quá trình đông đặc ảnh hưởng rất lớn tới kích thước hạt hình thành trong vật đúc. Thông thường, với tốc độ nguội nhỏ (dưới 100 K/s), hợp kim thu được sẽ có tổ chức tế vi truyền thống, kích thước hàng chục, hàng trăm micro-mét [1]. Khi tốc độ nguội tăng lên (cỡ hàng nghìn K/s), ta có thể thu

được các hạt có kích thước rất mịn chỉ vài micro-mét. Còn khi sử dụng các phương pháp làm nguội nhanh, với tốc độ nguội lên tới triệu K/s, cấu trúc hạt tạo ra có thể đạt kích thước nano-mét.

Thông thường tốc độ nguội trong phương pháp đúc khuôn cát rất chậm, vào khoảng (0,1–5) K/s. Với tốc độ nguội đó, kích thước ferrit và austenit trong hợp kim song pha có kích thước từ 100 tới 150 μm . Chỉ khi tôi vật đúc trong khí Heli với tốc độ nguội 140 K/s, sự chuyển biến martensit xảy ra, cơ tính của vật đúc mới tăng đáng kể [2,3]. Đối với đúc áp lực, tốc độ nguội cao hơn, vào khoảng (10–20) K/s

trước khi thoát khuôn và đo ở bề mặt vật đúc [4]. Còn việc sử dụng các phương pháp làm nguội nhanh lên tới hàng nghìn hoặc hàng triệu K/s không phải dễ dàng về mặt kĩ thuật cũng như hiệu quả kinh tế.

Ngoài điều khiển tốc độ nguội để thay đổi kích thước hạt, các hợp kim có các pha nhỏ mịn nằm lẫn trong nền cũng có tác dụng tăng cường cơ tính. Một ví dụ là sự tiết graphit dạng cầu ở gang cầu làm tăng đáng kể độ bền và độ cứng của gang. Vì vậy, nhu cầu về việc thiết kế hợp kim có các pha hạt nhỏ mịn, trong các điều kiện làm nguội thông thường là cấp thiết. Việc hiểu được ảnh hưởng của tốc độ nguội, cũng như gradient nhiệt độ trong việc hình thành các pha nhỏ mịn và đồng đều trở nên vô cùng quan trọng.

Quá trình kết tinh và hình thành pha diễn ra chủ yếu trong quá trình đông đặc. Quá trình hình thành tổ chức nhánh cây và di chuyển của các nhánh cây trong hợp kim trong suốt succinonitrile-acetone dưới trường nhiệt độ đã được mô hình hoá [5], thể hiện sự khuếch tán trên bề mặt rắn/lỏng đóng vai trò quan trọng. Mô hình pha-trường (phase-field) đã được đề xuất để mô tả sự kết tinh trong hợp kim hai nguyên trong điều kiện đẳng nhiệt [6,7]. Một số tác giả đã nghiên cứu thông qua mô phỏng pha-trường sự hình thành tổ chức trong quá trình kết tinh ở vùng hai pha, ảnh hưởng bởi tốc độ nguội và dòng chảy của kim loại [8–10].

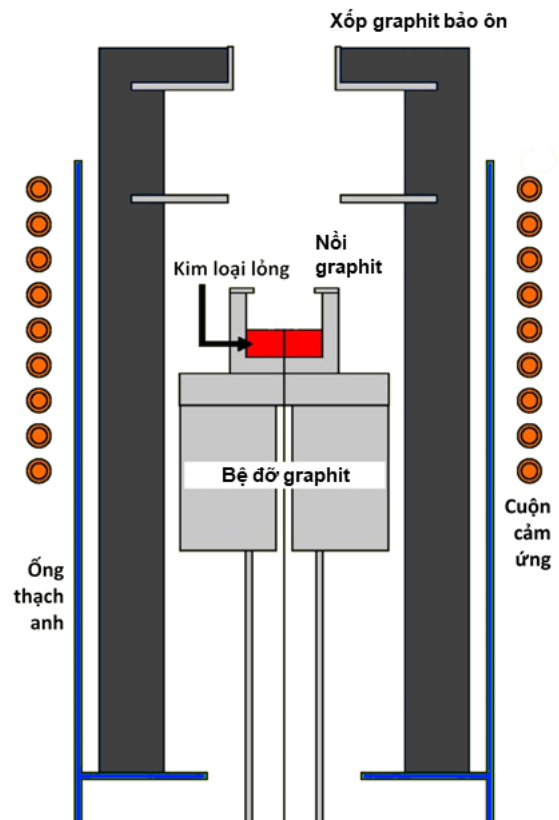
Nghiên cứu này trình bày kết quả mô phỏng và thực nghiệm của quá trình tạo hạt pha sơ cấp trong hệ Si-Ti-C với tốc độ kết tinh chậm. Kết quả cho thấy hình thái, kích thước, và sự phân bố của hạt phụ thuộc vào gradient nhiệt độ của hệ. Khi gradient nhiệt độ nhỏ hạt có xu hướng ở dạng cầu. Còn khi tăng gradient nhiệt, các hạt bị biến dạng theo phương của gradient nhiệt độ. Điều này hứa hẹn sẽ ảnh hưởng trực tiếp tới cơ tính của hợp kim và mở

ra khả năng điều khiển có hướng cơ tính của hợp kim.

2. THỰC NGHIỆM VÀ MÔ PHỎNG

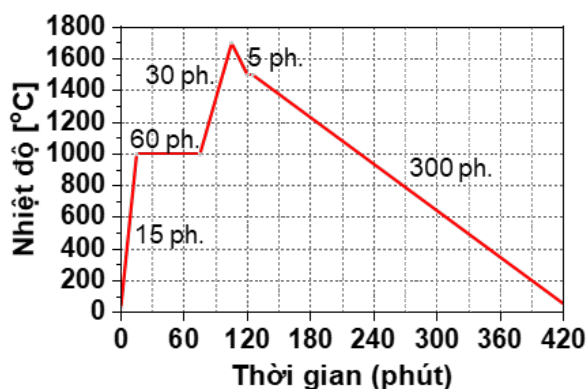
2.1. Thực nghiệm

Hỗn hợp 50 gram các hạt Si (99,999 %) và Ti (99,999 %) với tỉ phần nguyên tố là Si:Ti = 70:30 được đổ vào nồi graphit có đường kính trong là 48 mm. Nồi cùng với vật liệu được đưa vào lò cảm ứng được bảo ôn bởi xốp graphit và thạch anh như trên hình 1. Toàn bộ phần trên được đặt trong một buồng thép, được làm mát bằng nước tuần hoàn. Khí quyển trong buồng là khí Argon động ở áp suất 715 Torr để đảm bảo không khí không thể lọt vào làm ôxy hoá vật liệu và nồi ở nhiệt độ cao, và cũng không làm cho kim loại lỏng bị bay hơi quá nhanh. Nhiệt độ kim loại lỏng được đo bởi nhiệt kế hồng ngoại qua hai cửa sổ thạch anh đặt ở trên đỉnh và đáy của buồng lò.



Hình 1. Sơ đồ của lò nấu kim loại và thiết kế thí nghiệm

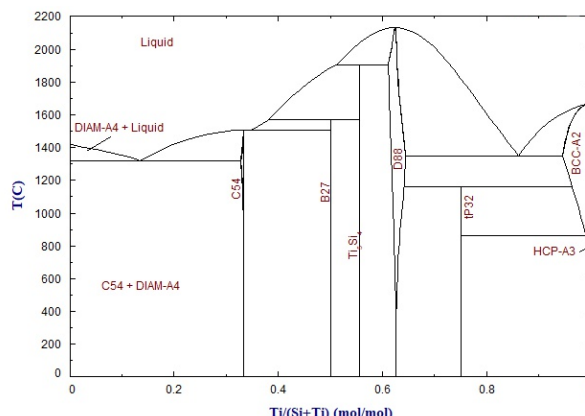
Quá trình gia nhiệt cho kim loại diễn ra theo 5 bước như trên hình 2. Bước đầu tiên, kim loại được gia nhiệt từ nhiệt độ phòng tới 1000 °C trong vòng 15 phút. Sau đó, nhiệt độ này được giữ trong vòng 1 giờ nhằm loại bỏ hoàn toàn Ôxy và các chất dễ bay hơi (VOC) còn tồn đọng trong buồng lò. Tiếp đến, kim loại được tăng nhiệt độ lên 1700 °C trong vòng 30 phút để đảm bảo hai kim loại nóng chảy hoàn toàn và có thời gian khuếch tán vào nhau. Sau đó, kim loại lỏng được từ từ hạ nhiệt độ xuống 1500 °C là nhiệt độ bắt đầu vùng 2 pha như trên hình 3, và được giữ ổn định tại nhiệt độ đó trong vòng 5 phút. Bước cuối cùng, lò được ngắt gia nhiệt và để nguội tự nhiên về nhiệt độ phòng. Tổng thời gian nguội tự nhiên là 5 giờ.



Hình 2. Quy trình nhiệt của thí nghiệm

Sau khi làm nguội, nôi cùng kim loại đã đông đặc được đưa ra khỏi lò và được cắt làm đôi thành mẫu. Mặt cắt đi qua trục đối xứng của nôi. Sau đó, mẫu được mài và đánh bóng. Tiếp đến, mẫu được quan sát dưới kính hiển vi quang học phân cực (Nikon) để khảo sát sự phân bố của các tổ chức tế vi. Hiển vi điện tử quét phát xạ trường (FESEM, JEOL) được sử dụng để quan sát các tổ chức tế vi có kích thước nhỏ của mẫu. Cuối cùng, đầu dò phổ phân tán năng lượng tia Rơnghen (EDX, Oxford Instruments) được

sử dụng để phân tích thành phần nguyên tố các vùng trên bề mặt mẫu.



Hình 3. Biểu đồ pha Si-Ti [11].

2.1. Mô phỏng

Mô hình 2D có kích thước 10×10 μm được sử dụng trong quá trình mô phỏng. Giả thiết tại thời điểm ban đầu, có 7 tâm mầm pha sơ cấp được phân bố trên miền tính toán, tương ứng với mật độ hạt quan sát được. Phương pháp được sử dụng để tính toán là phương pháp pha-trường được mô tả bởi phương trình Cahn-Hilliard:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla \cdot \frac{\gamma \lambda}{\varepsilon^2} \nabla \Psi \quad (1)$$

$$\Psi = -\nabla \cdot \varepsilon^2 \nabla \phi + (\phi^2 - 1)\phi \quad (2)$$

Trong đó, ϕ là biến pha-trường dùng để mô tả tỉ phần thể tích của các pha trong hệ, có giá trị từ -1 đến 1. Tỉ phần thể tích của 1 pha trong hệ là $(1 + \phi)/2$ và pha còn lại là $(1 - \phi)/2$. Như vậy, một vùng hay điểm có giá trị $\phi = 1$, tức là vùng/điểm đó hoàn toàn là pha thứ nhất, và vùng/điểm có giá trị $\phi = -1$ thì vùng/điểm đó hoàn toàn là pha thứ 2. Biến γ là độ linh động (đơn vị m³s/kg), λ là mật độ năng lượng trộn (đơn vị N), và ε chiều rộng lớp mao dẫn (đơn vị m). Cần phải hiểu ở đây sẽ không có một mặt tiếp xúc nào phân biệt rạch ròi 2 pha trong hệ, mà sẽ lớp tiếp xúc này được mô tả bằng một đường có độ dày nhất định có giá trị chuyển tiếp. Độ dày lớp tiếp xúc này tỷ lệ thuận với ε . Hai tham số λ

và ε liên quan với sức căng bề mặt σ giữa 2 pha qua công thức:

$$\sigma = \frac{2\sqrt{2}\lambda}{3\varepsilon} \quad (3)$$

Theo một công bố trước đó [12], giá trị sức căng bề mặt Si-Ti ước đạt xấp xỉ 1.5 N/m tại tỉ phần nguyên tố như trong nghiên cứu này. Tuy nhiên trên thực tế, sức căng bề mặt lại ảnh hưởng bởi nhiệt độ thông qua hệ số sức căng bề mặt ω (đơn vị N/mK), được biết đến với tên là hiệu ứng Marangoni. Vì vậy, trường nhiệt độ trong lòng kim loại lỏng được mô phỏng lại và đưa vào trở thành tham số ban đầu của nghiên cứu này. Chi tiết quá trình mô phỏng trường nhiệt độ đã được trình bày tại các nghiên cứu trước [13,14]. Trong nghiên cứu này, các giá trị của độ linh động γ , mật độ năng lượng trộn λ , chiều rộng lớp mao dẫn ε , và hệ số sức căng bề mặt ω được sử dụng lần lượt là 8×10^{-16} m³s/kg, 3×10^{-10} N, 3×10^{-2} μ m, 1×10^{-3} N/mK.

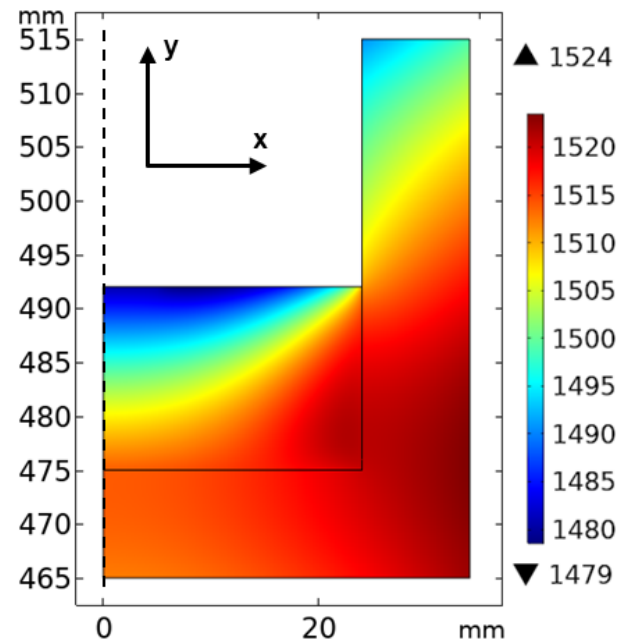
Để đơn giản hoá mô hình, nhiệt tỏa ra do pha tiết ra là không đáng kể và được bỏ qua. Tiếp đến, năng lượng của hệ thay đổi được coi chỉ do quá trình trộn và không áp dụng bảo toàn năng lượng trong toàn hệ. Đó đó trường nhiệt độ của hệ không thay đổi.

Ngoài ra, định luật bảo toàn khối lượng của hệ cũng được áp dụng thông qua tích phân của ϕ trên toàn bộ miền tính toán được bảo toàn là một hằng số.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

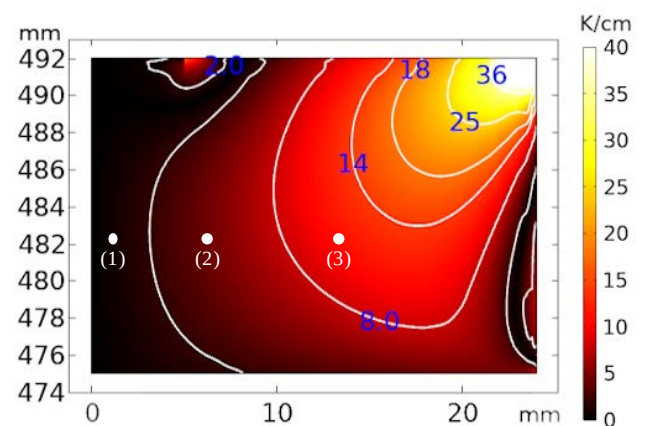
3.1. Trường nhiệt độ trong lòng kim loại lỏng

Trường nhiệt độ trong lòng chất lỏng và nôi graphit tại khoảng nhiệt độ 1500 °C được hiển thị trên hình 4. Có thể thấy rằng trên bề mặt kim loại lỏng, nhiệt độ thấp hơn do nhiệt mất đi qua bức xạ tới hướng của sổ đo nhiệt độ.



Hình 4. Trường nhiệt độ trong lòng kim loại lỏng và nôi graphit (biểu diễn một nửa qua trục đối xứng)

Ta có thể thấy chênh lệch về nhiệt độ trong kim loại lỏng theo phương y là đáng kể, tối đa lên tới 100 K/cm. Trong khi đó, gradient nhiệt độ theo phương x là nhỏ hơn đáng kể, tối đa lên tới 40 K/cm, như biểu diễn trên hình 5.

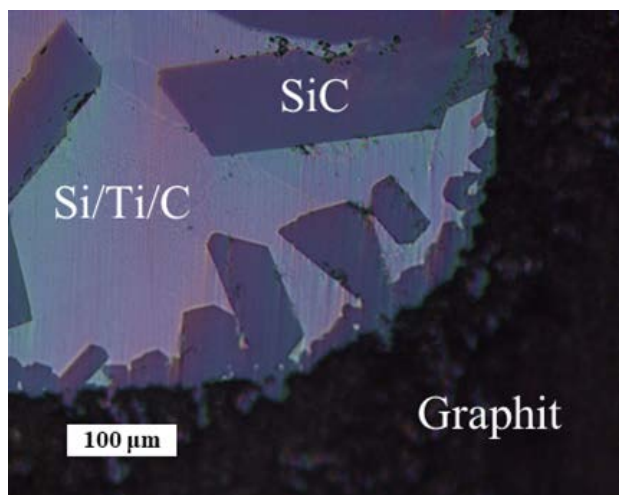


Hình 5. Gradient nhiệt độ theo phương x trong lòng chất lỏng

Trường nhiệt độ tại các vùng (1), (2) và (3) được lấy ra và áp dụng vào trường nhiệt độ ban đầu của mô phỏng pha-trường. Chú ý rằng nhiệt tạo thành

của pha sơ cấp được coi là nhỏ và không ảnh hưởng tới trường nhiệt độ của cả hệ.

3.2. Tổ chức hình thành trong lòng kim loại lỏng

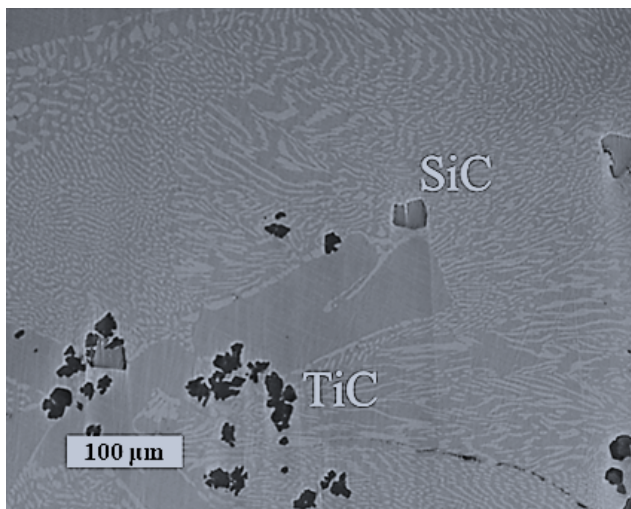


Hình 6. Ảnh quang học của mẫu tại vị trí góc đáy của nôi graphit.

Trong quá trình gia nhiệt, cacbon từ thành nôi graphit khuếch tán vào kim loại lỏng. Cho nên, trên thực tế hệ nguyên tố cần xét đến ở đây bao gồm 3 nguyên tố là Si, Ti và C. Tuy nhiên, hệ số khuếch tán cũng như độ tan của C trong kim loại lỏng là tương đối nhỏ [15], trong khi đó ái lực của Si, là thành phần chính của kim loại, và Ti với C rất lớn. Vì vậy, phần nhiều tinh thể SiC kích thước lớn và một phần ít hơn là TiC sẽ được hình thành ở ngay gần bề mặt của nôi graphit [16], như được thể hiện trên hình 6. Còn trong lòng kim loại lỏng, hầu như không thể quan sát được các hạt cacbit. Cho nên, có thể coi gần đúng ở trong lòng kim loại, cacbon chỉ còn tồn tại ở nồng độ bão hoà và rất nhỏ, và hệ trở thành hệ 2 nguyên Si-Ti.

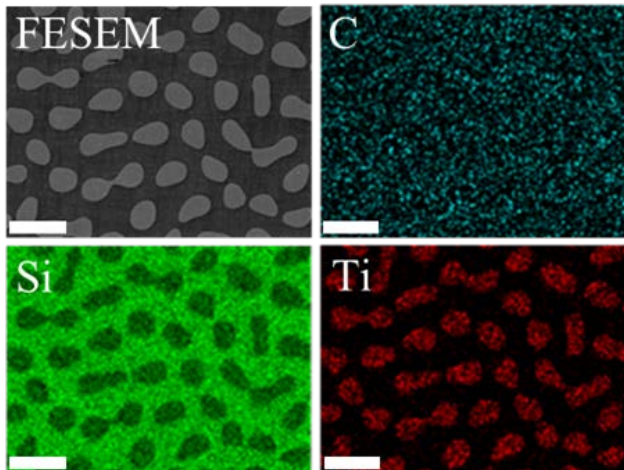
Tiếp tục đi sâu hơn một chút vào trong lòng kim loại, ta có thể quan sát được các hạt carbide có kích thước nhỏ hơn so với ở gần nôi. Ngoài ra, còn có pha màu sáng dạng xếp lớp trên nền màu tối hơn, như trên hình 7. Hình thái của pha sáng này tương tự như tổ chức của các hợp kim cùng tinh. Chiều dài các dải này có thể lên tới hàng trăm micro-mét. Cơ

chế hình thành các tổ chức ở vùng này có thể tương tự như trong các hợp kim cùng tinh, với pha chính là pha giàu Ti được tạo thành trước trong quá trình nguội và pha nền là Si.



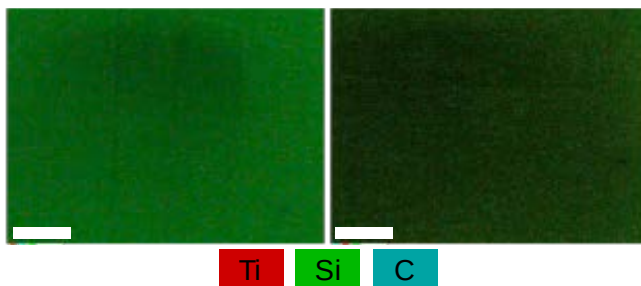
Hình 7. Ảnh quang học của mẫu tại vị trí gần thành nôi.

Hình 8 biểu diễn ảnh hiển vi điện tử quét và phân bố của các nguyên tố (Si, Ti, và C) tại 1 điểm sâu hơn nữa trong lòng kim loại, nằm giữa vùng số 3 và thành nôi. Hình thái của pha sáng màu không còn là các dải xếp lớp nữa mà chủ yếu là các hạt có hình dáng gần tròn và kích thước nhỏ hơn 10 μm. Sơ bộ có thể thấy, nguyên tố Ti chỉ có ở các pha sáng màu. Còn pha nền (tối màu) đa phần là nguyên tố Si.



Hình 8. Ảnh bản đồ nguyên tố thể hiện sự phân bố nguyên tố Ti, Si và C trong lòng kim loại. Khung tỉ lệ 10 μm .

Để làm rõ hơn nữa thành phần nguyên tố của hạt và nền, bản đồ nguyên tố được khảo sát trên 1 hạt và nền, kết quả được thể hiện trên hình 9 và bảng 1. Đối với nguyên tố nhẹ như C, kết quả hàm lượng trong phép đo EDX thường bị ảnh hưởng bởi nhiều yếu tố khách quan và không được chính xác. Nhưng nếu chỉ xét đến 2 nguyên tố Si và Ti thì hầu như nền là Si và không còn Ti nữa. Còn ở pha sáng màu, tỉ lệ nguyên tử Si:Ti $\approx 2:1$, nên có thể kết luận pha sơ cấp tạo thành chính là Si_2Ti . Điều này hoàn toàn phù hợp với giản đồ pha Si-Ti trên hình 3.



Hình 9. Phân bố nguyên tố Ti, Si và C trong hạt pha sáng màu (bên trái) và trong nền (bên phải).

Bảng 1. Thành phần nguyên tố (% nguyên tử) được xác định bởi quét EDX trên nền và hạt.

Pha	C (% ng.tử)	Si (% ng.tử)	Ti (% ng.tử)
Nền	11.32	88.44	0.24
Hạt	10.51	59.57	29.92

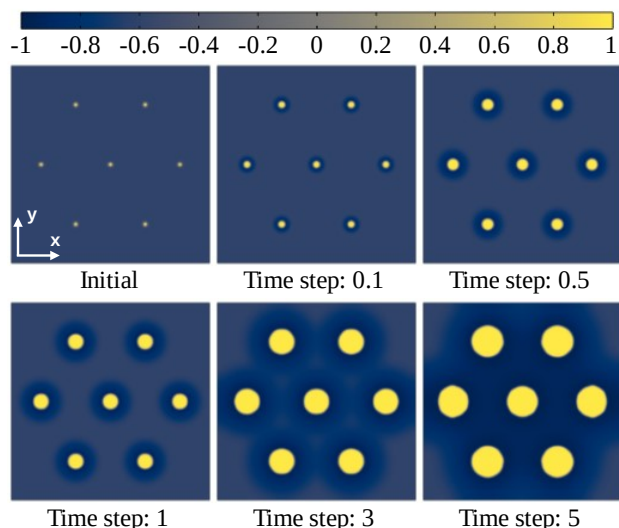
Nền	11.32	88.44	0.24
Hạt	10.51	59.57	29.92

3.3. Sự phát triển pha sơ cấp

3.3.1. Mô phỏng pha-trường

Hình 10 biểu diễn sự phát triển của hạt pha sơ cấp Si_2Ti qua các bước thời gian, tại vùng (1) trên hình 5. Tại điểm này, gradient nhiệt độ theo phương x tương đối nhỏ, chỉ vào khoảng 1 K/cm. Tại thời điểm ban đầu, có 7 tâm mầm (màu sáng) được phân bố đều trên miền tính toán. Còn nền có giá trị $\phi = -0.4$, thể hiện tỉ phần ban đầu của Si:Ti = 70:30. Có thể thấy, theo thời gian các nguyên tử Ti ở gần mầm khuếch tán đến bề mặt và góp phần tạo thành pha sơ cấp. Từ đó tạo thành 1 lớp nghèo Ti và giàu Si bao phía bên ngoài các hạt sơ cấp. Khi các hạt lớn dần, thì lớp nghèo Ti cũng lớn dần, và kết quả cuối cùng là các hạt pha sơ cấp trên nền Si như kết quả thực nghiệm ở phần trên.

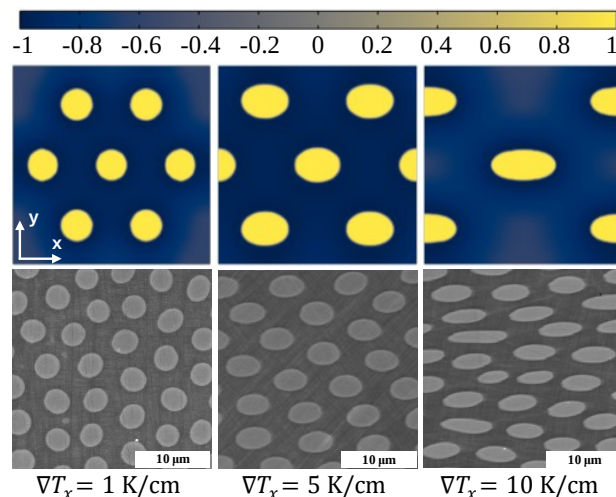
Ngoài ra, ta còn thấy rằng, ở giai đoạn đầu phát triển, các hạt sơ cấp rất tròn. Nhưng ở bước thời gian 5 ms, đã có hiện tượng méo hạt. Điều này có thể được giải thích bởi kích thước của hạt. Khi hạt còn kích thước nhỏ thì gradient nhiệt trên hạt cũng rất nhỏ và có thể bỏ qua. Còn khi hạt lớn hơn, năng lượng bề mặt cũng như gradient nhiệt trên hạt lớn hơn, do đó thể hiện ảnh hưởng của gradient nhiệt lên hình thái của hạt.



Hình 10. Ảnh mô phỏng sự phát triển của hạt sơ cấp từ các mầm ban đầu. Thang độ sáng thể hiện giá trị ϕ . Màu càng tối, tỉ phần Si càng lớn và ngược lại.

3.3.2. Ảnh hưởng của gradient nhiệt độ

Hình 11 biểu diễn hình thái của hạt Si_2Ti bằng cả mô phỏng và quan sát thực nghiệm tại các vùng có gradient nhiệt độ theo phương x là 1, 5, và 10 K/cm, tương ứng tại vùng (1), (2), và (3) trên hình 5. Có thể thấy rằng, trong trường hợp gradient nhiệt độ nhỏ (1 K/cm) tại vùng (1), các hạt có dạng hình tròn (cầu trong 3 chiều) tương đối hoàn hảo. Kích thước các hạt dao động (2–3) μm . Khi gradient nhiệt độ tăng lên trong một giới hạn nhất định (5 K/cm) như tại vùng (2), các hạt càng có xu hướng bị biến dạng theo phương của gradient thành hình elip. Thậm chí tại vùng (3), hạt trong thực tế còn bị ảnh hưởng bởi cả gradient theo phương y, và biến dạng nhiều hơn, không còn hoàn toàn là hình elip nữa.



Hình 11. Ảnh hưởng của gradient nhiệt độ tới hình thái của hạt. Hàng trên là hình ảnh mô phỏng của hệ sau bước thời gian 5 ms, hàng dưới là hình ảnh hiển vi điện tử quét của mẫu chụp tại các vùng (1), (2), và (3) trên hình 5. Gradient nhiệt độ theo phương ngang tương ứng là 1, 5, và 10 K/cm. Thang độ sáng thể hiện giá trị ϕ . Màu càng tối, tỉ phần Si càng lớn và ngược lại.

Các điều này cho ta một gợi ý rằng nếu đặt trong một gradient nhiệt đủ lớn thì các hạt hoàn toàn có thể biến đổi thành hình kim. Hình thái như vậy không phải là một lựa chọn hoàn hảo vì ứng suất sẽ tập trung tại các đầu nhọn như vậy. Thay vào đó, các pha phát triển trong điều kiện gradient nhiệt thấp và làm nguội thông thường hoàn toàn có thể tạo thành các hạt nhỏ và mịn, giúp làm tăng cơ tính của hợp kim và vật đúc.

4. KẾT LUẬN

Nghiên cứu đã chỉ ra được mối liên hệ trực tiếp giữa gradient nhiệt độ với kích thước và hình thái của hạt pha sơ cấp hình thành từ kim loại lỏng 2 nguyên Si-Ti bằng mô phỏng cũng như thực nghiệm. Trong điều kiện gradient nhiệt độ thấp (dưới 5 K/cm) và tốc độ nguội tương đương các phương pháp đúc truyền thống, hạt pha sơ cấp, cụ thể là Si_2Ti trong nghiên cứu này, có kích cỡ nhỏ (từ 2–3 μm) và hình thái tròn mịn (gần như dạng cầu). Từ đó mở ra khả

năng chế tạo các hợp kim và vật đúc cho tổ chức nhỏ mịn và cơ tính tốt.

TÀI LIỆU TRÍCH DẪN

- [1]. M. Mueller, S. Wiese, M. Roellig, K.-J. Wolter; *Effect of Composition and Cooling Rate on the Microstructure of SnAgCu-Solder Joints*, 2007 Proc. 57th Electron. Compon. Technol. Conf., IEEE, Reno, NV, 2007, pp. 1579–1588.
- [2]. R. Daňko, M. Holtzer, M. Górný, S. Żymankowska-Kumon; *Effect of Reclamation on the Skin Layer of Ductile Iron Cast in Furan Molds*, Journal of Materials Engineering and Performance, 22, 2013, pp. 3592–3600.
- [3]. Z. P. Xiong, A. G. Kostyrychev, N. E. Stanford, E. V. Pereloma; *Microstructures and mechanical properties of dual phase steel produced by laboratory simulated strip casting*, Materials & Design, 88, 2015, pp. 537–549.
- [4]. J. Majernik, S. Gaspar, M. Podaril, T. Coranic; *Evaluation of thermal conditions at cast-die casting mold interface*, MM Science Journal, 2020, pp. 4112–4118.
- [5]. Q. Zhang, H. Xue, Q. Tang, S. Pan, M. Rettenmayr, M. Zhu; *Microstructural evolution during temperature gradient zone melting: Cellular automaton simulation and experiment*, Computational Materials Science, 146, 2018, pp. 204–212.
- [6]. A. Karma; *Phase-Field Formulation for Quantitative Modeling of Alloy Solidification*, Physical Review Letters, 87, 2001, pp. 115701.
- [7]. L. Gránásy, T. Börzsönyi, T. Pusztai; *Nucleation and Bulk Crystallization in Binary Phase Field Theory*, Physical Review Letters, 88, 2002, pp. 206105.
- [8]. P. Das, P. Dutta; *Phase field modelling of microstructure evolution and ripening driven grain growth during cooling slope processing of A356 Al alloy*, Computational Materials Science, 125, 2016, pp. 8–19.
- [9]. R. S. Qin, E. R. Wallach; *Phase-field simulation of semisolid metal processing under conditions of laminar and turbulent flow*, Materials Science and Engineering A, 357, 2003, pp. 45–54.
- [10]. W. Qu, M. Luo, Z. Guo, X. Hu, A. Zhang, F. Zhang, D. Li, Y. Zhang; *Effect of Temperature Gradient on the Grain Size Homogeneity of SEED Produced Semi-Solid Slurries by Phase-Field Simulation*, Materials, 12, 2019, pp. 3309.
- [11]. C. W. Bale, E. Bélisle, P. Chartrand, S. A. Decterov, G. Eriksson, A. E. Gheribi, K. Hack, I.-H. Jung, Y.-B. Kang, J. Melançon, A. D. Pelton, S. Petersen, C. Robelin, J. Sangster, P. Spencer, M.-A. Van Ende; *FactSage thermochemical software and databases, 2010–2016*, Calphad, 54, 2016, pp. 35–53.
- [12]. S. K. Yadav, U. Mehta, D. Adhikari; *Optimization of thermodynamic and surface properties of ternary Ti–Al–Si alloy and its sub-binary alloys in molten state*, Heliyon, 7, 2021, pp. e06511.
- [13]. M.-T. Ha, Y.-J. Shin, M.-H. Lee, C.-J. Kim, S.-M. Jeong; *Effects of the Temperature Gradient Near the Crystal-Melt Interface in Top Seeded Solution Growth of SiC Crystal*, Physica Status Solidi (a), 215, 2018, pp. 1701017.

- [14].M.-T. Ha, Y.-J. Yu, Y.-J. Shin, S.-Y. Bae, M.-H. Lee, C.-J. Kim, S.-M. Jeong; *Flow modification enhancing the growth rate in top seeded solution growth of SiC crystals*, RSC Advances, 9, 2019, pp. 26327–26337.
- [15].J. Lefebure, J.-M. Dedulle, T. Ouisse, D. Chaussende; *Modeling of the Growth Rate during Top Seeded Solution Growth of SiC Using Pure Silicon as a Solvent*, Crystal Growth & Design, 12, 2012, pp. 909–913.
- [16].T. Narumi, S. Kawanishi, T. Yoshikawa, K. Kusunoki, K. Kamei, H. Daikoku, H. Sakamoto; *Thermodynamic evaluation of the C–Cr–Si, C–Ti–Si, and C–Fe–Si systems for rapid solution growth of SiC*, Journal of Crystal Growth, 408, 2014, pp. 25–31.