

УДК 519.6

## ВЕРИФИКАЦИЯ МОДЕЛИ РАСЧЕТА КОНВЕКТИВНОГО ПЕРЕНОСА ПРИМЕСИ НА ПРИМЕРЕ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ ДВУХКОМПОНЕНТНЫХ РАСПЛАВОВ Pb-Sn

С. М. Ганина, В. П. Гинкин  
(ГНЦ РФ-ФЭИ, г. Обнинск)

Разработан алгоритм расчета сегрегации примеси при кристаллизации двухкомпонентных расплавов, характеризующихся большими размерами двухфазной области. При расчете конвекции в пористой среде учитывается добавочное сопротивление течению по аналогии с законом Дарси. Температура *ликвидус* линейно зависит от концентрации примеси в жидкой фазе.

Предложенная модель реализована в программном комплексе GIGAN-2D. Для верификации модели просчитаны два численных бенчмарка: по кристаллизации расплава Sn с 10 %-ным содержанием Pb и расплава Pb с 18 %-ным содержанием Sn.

*Ключевые слова:* перспективные материалы, интерметаллиды, направленная кристаллизация, расплав, двухфазная переходная зона, численный бенчмарк, сегрегация, математическое моделирование, конвективный перенос примеси, движущиеся границы, алгоритм расчета.

### Введение

Целью настоящей работы является верификация математической модели и программы расчета кристаллизации интерметаллидов, в частности, на основе двухкомпонентных сплавов TiAl. Эти сплавы широко используются в промышленности ввиду их высоких эксплуатационных характеристик. Основной проблемой при направленной кристаллизации интерметаллидов на основе TiAl является обеспечение и поддержание оптимальных температурных условий вблизи фронта кристаллизации для получения воспроизводимой микроструктуры материала по всей длине слитка. Эти тепловые режимы детально не изучены, что часто приводит к срыву микроструктуры кристаллизующегося материала и, в итоге, к литьевому браку.

Оценить параметры роста в динамике можно только по результатам численного моделирования процессов тепломассопереноса и по результатам расчетов соответствующих бенчмарков. Значительное различие температур *солидус* и *ликвидус* для TiAl приводит к формированию широкой двухфазной зоны (*mushy zone*). В ней

наряду с твердой фазой (кристаллитами и дендритами) содержится и междендритный расплав, течение которого может влиять на состав расплава у растущей ветви дендрита и определять таким образом состав кристаллизующихся поликристаллических зерен.

В работе [1] была предложена математическая модель для описания процесса тепломассопереноса при кристаллизации расплава в среде с двухфазной приграничной областью вблизи границы фазового перехода. В этой модели численно решается задача Стефана с двумя границами: *твердая фаза — двухфазная зона* и *двухфазная зона — жидкая фаза* с учетом конвекции в расплаве и двухфазной зоне с неоднородным распределением твердой фазы по объему этой зоны. В жидкой области решаются уравнения Навье—Стокса в приближении Буссинеска, в переходной двухфазной зоне — модифицированные уравнения Навье—Стокса, в которых учитывается дополнительная сила сопротивления течению расплава вследствие тормозящего воздействия зарождающейся и прорастающей в расплав твердой фазы. Предложенная модель с успехом при-

менялась для описания процессов тепломассопереноса при кристаллизации полупроводниковых расплавов методами Бриджмена и бестигельной зонной плавки в земных и космических условиях.

Однако в этих расчетах толщина двухфазной области была относительно малой (менее 0,5 мм). В рассматриваемой задаче толщина двухфазной области значительно больше (десятки миллиметров), что является совершенно новым фактором для данной модели и требует разработки новых методов оценки распределения долей твердой и жидкой фаз в двухфазной области в процессе кристаллизации.

В работе [2] дано описание двумерного численного бенчмарка для верификации математических моделей и программ расчета конвективно-переноса примесей при кристаллизации двухкомпонентных расплавов. В настоящее время исследователи разных стран проводят сравнительные расчеты этого бенчмарка по различным программам. Результаты сравнений будут представлены на сайте <http://www.ijl.nancy-universite.fr/benchmark-solidification/>.

В данной работе приведены первые результаты расчетов указанного бенчмарка, полученные с помощью разработанного в ГИЦ РФ-ФЭИ кода GIGAN-2D, который предполагается использовать для расчетов кристаллизации интерметаллидов на основе TiAl.

### Описание бенчмарка

Прямоугольная емкость высотой 0,06 м и шириной 0,1 м с двухкомпонентным расплавом помещена в термостат при температуре, равной температуре ликвидус  $T_L$ . Сила тяжести направлена по вертикали сверху вниз. Один из компонентов расплава (с наименьшей концентрацией) считается примесью. Схема расчетной области представлена на рис. 1.

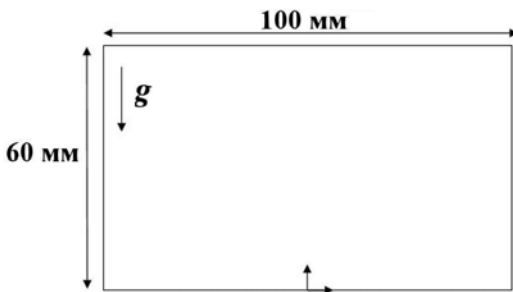


Рис. 1. Схема расчетной области

В начальный момент времени на боковых стенках емкости задается отвод тепла  $q_b = h_T (T - T_{ext})$ , где  $T$  — температура боковой стенки;  $h_T = 400 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-2}\text{К}^{-1}$ ;  $T_{ext} = 25 \text{ }^\circ\text{C}$ . В кювете развивается свободная конвекция из-за появившихся градиентов температур и концентраций. Считается, что плотности, коэффициенты теплопроводности и теплоемкости жидкой и твердой фаз совпадают. Считается также, что диффузии примеси нет, т. е. коэффициент диффузии равен нулю. Кроме того, в уравнении движения учитывается течение через пористую среду посредством добавления в него слагаемого вида  $\frac{\mu \varepsilon_l}{K} \mathbf{v}_l$ ,  $K = \frac{\lambda_2^2 \varepsilon_l^3}{180 (1 - \varepsilon_l)^2}$ , где  $\mu$  — вязкость;  $\varepsilon_l$  — пористость вещества в двухфазной зоне;  $\mathbf{v}_l$  — скорость течения расплава;  $\lambda_2$  — расстояние между вторичными ветвями дендритов (заданная константа).

Считается, что концентрация примеси в жидкой фазе  $C_l$  в двухфазной зоне всегда совпадает с равновесной, т. е.  $C_l = (T - T_m) / m$ , где  $T$  — температура расплава в двухфазной зоне;  $T_m$  — температура плавления чистого вещества (в отсутствие примеси);  $m$  — наклон линии ликвидус на фазовой диаграмме (угловой коэффициент). Концентрация примеси в твердой фазе  $C_s$  определяется через равновесный коэффициент распределения  $k_0$ :  $C_s = k_0 C_l$ .

Введем обозначения

$$\begin{aligned} \mathbf{V} &= \varepsilon_l \mathbf{v}_l; & p &= p_l; & \varepsilon_s &= 1 - \varepsilon_l; \\ h_s &= c_p T; & h_l &= c_p T + L; & \langle h \rangle &= c_p T + \varepsilon_l L; \\ \langle C \rangle &= \varepsilon_l C_l + \varepsilon_s C_s = [\varepsilon_l + (1 - \varepsilon_l) k_0] C_l; \\ \tilde{\rho} &= \rho [1 - \beta_T (T - T_{ref}) - \beta_C (C_l - C_{ref})], \end{aligned}$$

где  $\mathbf{V}$  — скорость фильтрации;  $L$  — теплота фазового перехода;  $h$  — удельная энтальпия;  $p$  — давление;  $c_p$  — теплоемкость;  $\beta_T$ ,  $\beta_C$  — коэффициенты теплового и концентрационного расширения;  $T_{ref}$ ,  $C_{ref}$ ,  $\rho$  — температура расплава, концентрация примеси и плотность вещества в начальный момент времени (заданные константы). Индексы  $l$  и  $s$  обозначают принадлежность к жидкой и твердой фазе соответственно. Тогда получаются следующие уравнения конвективно-тепломассопереноса:

– уравнение движения

$$\begin{aligned} \nabla (\mu_l \nabla \mathbf{V}) - \varepsilon_l \nabla p - \frac{\mu_l \varepsilon_l}{K} \mathbf{V} + \varepsilon_l \tilde{\rho} \mathbf{g} = \\ = \rho \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + \frac{\rho}{\varepsilon_l} (\nabla \mathbf{V}) \mathbf{V}; \end{aligned}$$

– уравнение неразрывности

$$\nabla \mathbf{V} = 0;$$

– уравнение энергии

$$\rho \frac{\partial \langle h \rangle}{\partial t} + \rho c_p \nabla T \mathbf{V} - \nabla (\kappa \nabla T) = 0;$$

– уравнение переноса примеси

$$\frac{\partial \langle C \rangle}{\partial t} + \nabla C_l \mathbf{V} = 0.$$

Для расчетов выбирались следующие сплавы: Sn-10 % Pb\* и Pb-18 % Sn. Теплофизические свойства для этих сплавов приведены в табл. 1, 2.

На рис. 2 (см. также цветную вкладку) приведены результирующие распределения отклонений концентраций примесей от начальной ( $C - C_0$ ) через 600 секунд после начала кристаллизации. На этом же рисунке показаны контрольные точки, для которых проводилось сравнение (табл. 3). Кроме того, сравнивались одномерные вертикальные и горизонтальные профили отклонений  $C - C_0$ , заданные в табл. 4.

Таблица 1

**Теплофизические свойства для сплава Pb-18 % Sn**

Величина	Обозначение	Значение
Теплоемкость	$c_p$	176 Дж/(кг · К)
Теплота фазового перехода	$L$	$3,76 \cdot 10^4$ Дж/кг
Теплопроводность	$\kappa$	17,9 Вт/(м · К)
Динамическая вязкость	$\mu_l$	$1,10 \cdot 10^{-3}$ Па · с
Расстояние между вторичными ветвями дендритов	$\lambda_2$	$1,85 \cdot 10^{-4}$ м
Коэффициент теплового расширения жидкой фазы	$\beta_T$	$1,16 \cdot 10^{-4}$ К <sup>-1</sup>
Коэффициент концентрационного расширения жидкой фазы	$\beta_C$	$4,90 \cdot 10^{-3}$ (%) <sup>-1</sup>
Начальная концентрация примеси	$C_0$	18 %
Плотность	$\rho$	9250 кг/м <sup>3</sup>
Точка плавления при $C = 0$	$T_m$	327,5 °С
Температура начала образования эвтектики	$T_e$	183,0 °С
Равновесный коэффициент распределения	$k_0$	0,310
Угловой коэффициент	$m_l$	$-2,334$ К · (%) <sup>-1</sup>

Таблица 2

**Теплофизические свойства для сплава Sn-10 % Pb**

Величина	Обозначение	Значение
Теплоемкость	$c_p$	260 Дж/(кг · К)
Теплота фазового перехода	$L$	$6,10 \cdot 10^4$ Дж/кг
Теплопроводность	$\kappa$	55 Вт/(м · К)
Динамическая вязкость	$\mu_l$	$1,00 \cdot 10^{-3}$ Па · с
Расстояние между вторичными ветвями дендритов	$\lambda_2$	$6,50 \cdot 10^{-5}$ м
Коэффициент теплового расширения жидкой фазы	$\beta_T$	$6,00 \cdot 10^{-5}$ К <sup>-1</sup>
Коэффициент концентрационного расширения жидкой фазы	$\beta_C$	$-5,30 \cdot 10^{-3}$ (%) <sup>-1</sup>
Начальная концентрация примеси	$C_0$	10 %
Плотность	$\rho$	7000 кг/м <sup>3</sup>
Точка плавления при $C = 0$	$T_m$	232 °С
Температура начала образования эвтектики	$T_e$	183,0 °С
Равновесный коэффициент распределения	$k_0$	0,0656
Угловой коэффициент	$m_l$	$-1,286$ К · (%) <sup>-1</sup>

\*Здесь и далее в процентах выражена массовая доля примеси.

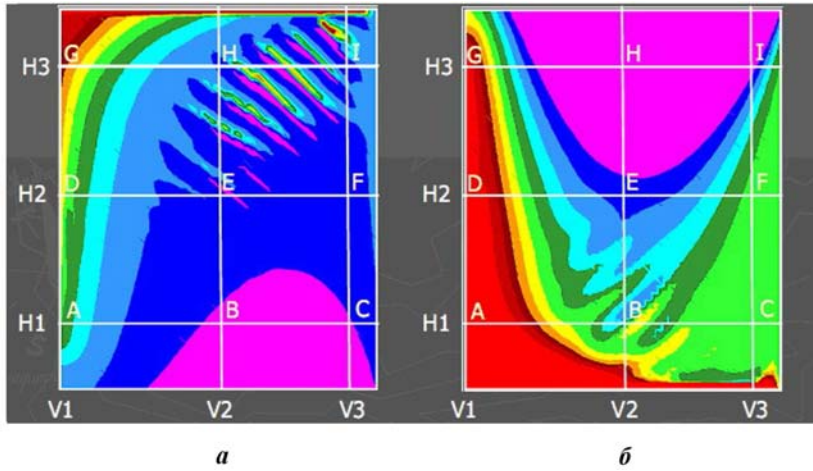


Рис. 2. Результирующие распределения отклонений концентраций примесей от начальной: *a* — Pb-18% Sn; *б* — Sn-10% Pb

Таблица 3

Контрольные точки для сравнения результатов расчетов

Точка	$x$ , мм	$y$ , мм
A	0	10
B	25	10
C	45	10
D	0	30
E	25	30
F	45	30
G	0	50
H	25	50
I	45	50

Таблица 4

Одномерные вертикальные и горизонтальные профили отклонений  $C - C_0$  для сравнения

Обозначение профиля	Уравнение профиля
H1	$y = 10$
H2	$y = 30$
H3	$y = 50$
V1	$x = 0$
V2	$x = 25$
V3	$x = 45$

### Алгоритм расчета

В программном комплексе GIGAN-2D для расчетов использовался неявный алгоритм установления [3]. Расчеты проводились при разных ша-

гах по времени и по пространству. Ранее было найдено, что шаг по времени  $\Delta t = 0,005$  с является приемлемым. Так как дальнейшее уменьшение шага не приводит к заметному изменению результатов, то в расчетах принят именно этот шаг.

В программе GIGAN-2D расчет конвективно-го переноса примеси проводится с учетом диффузии, тогда как в описанном выше бенчмарке диффузия примеси не учитывается. При расчете задавался коэффициент диффузии примеси в расплаве, равный  $10^{-30}$  м<sup>2</sup>/с. При этом уравнение переноса, указанное в предыдущем разделе, заменялось на следующее:

$$\frac{\partial \langle C \rangle}{\partial t} + \nabla C_i \mathbf{V} = \nabla D_i \nabla C_i.$$

Для аппроксимации уравнений модели применялся метод Патанкара—Сполдинга с использованием смещенных на полшага сеток для расчетов компонент скоростей по осям  $X$  и  $Y$ . Для аппроксимации конвективных членов применялся экспоненциальный метод, предложенный в работе [4], приводящий к монотонным разностным схемам. Разностное уравнение для давления получалось из разностного уравнения неразрывности.

На каждом шаге по времени выполнялась следующая последовательность действий:

1. По заданным распределениям долей жидкой фазы  $\epsilon_l$ , температур  $T$  и концентраций  $C_l$  рассчитываются распределения компонент скоростей и давления.
2. Рассчитывается новое распределение энтальпии  $\langle h \rangle$ .

3. По найденному распределению энтальпии восстанавливается поле температур. Оно находится из условия квазистационарности  $T = T_m + mC_l$  путем решения квадратного уравнения

$$\langle h \rangle = C_p T + L \left( \frac{\langle C \rangle m}{T - T_m} - k_0 \right) \frac{1}{1 - k_0}$$

и имеет вид

$$T = T_m + \frac{(1 - k_0)(\langle h \rangle - C_p T_m) + L k_0}{2(1 - k_0) C_p} - \sqrt{\left[ \frac{(1 - k_0)(\langle h \rangle - C_p T_m) + L k_0}{2(1 - k_0) C_p} \right]^2 - \frac{L \langle C \rangle m}{(1 - k_0) C_p}}$$

4. Вычисляется новое распределение долей жидкой фазы  $\varepsilon_l$  по формуле

$$\varepsilon_l = \left( \frac{\langle C \rangle m}{T - T_m} - k_0 \right) \frac{1}{1 - k_0}$$

5. Сравниваются старое и новое распределения энтальпии. Если точность не достигнута, возвращаемся к п. 2.

6. Решается уравнение для переноса примесей и находятся новые распределения концентраций  $C_l$ ,  $C_s = k_0 C_l$  и  $\langle C \rangle = \varepsilon_l C_l + \varepsilon_s C_s$ .
7. Сравниваются старое и новое распределения концентраций  $\langle C \rangle$ . Если точность не достигнута, возвращаемся к п. 2.
8. Сравниваются старое и новое распределения давлений. Если точность не достигнута, возвращаемся к п. 1.
9. Переходим к следующему временному шагу.

### Результаты расчетов

На рис. 3 (см. также цветную вкладку) приведены карты распределений отклонений концентраций примесей от начальной ( $C - C_0$ ) для сплава Sn-10% Pb, рассчитанные на сетках  $50 \times 60$  и  $25 \times 30$  авторами бенчмарка по программе SOLID и авторами статьи по программе GIGAN-2D. Из представленных результатов видно, что между приведенными данными имеется неплохое качественное согласие.

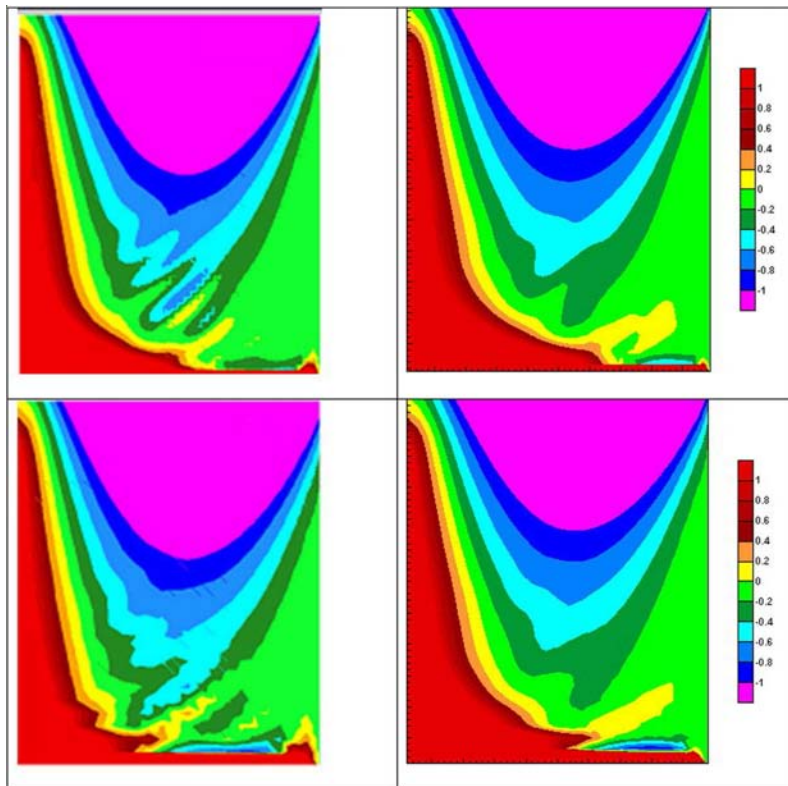


Рис. 3. Сравнение результатов, полученных по программам SOLID (слева) и GIGAN-2D (справа) для Sn-10% Pb: сверху — сетка  $50 \times 60$ ; внизу — сетка  $25 \times 30$

На рис. 4 (см. также цветную вкладку) приведены профили отклонений концентраций в сечениях  $H_3$  и  $H_1$  (см. табл. 4), полученные по программе SOLID. На рис. 5 (см. также цветную вкладку) приведены те же профили, полученные по программе GIGAN-2D. Из представленных данных видно заметное количественное расхождение результатов, хотя качественное согласие имеется.

На рис. 6 (см. также цветную вкладку) приведены карты распределений отклонений концентраций примесей от начальной ( $C - C_0$ ) для сплава Pb-18% Sn, рассчитанные на сетках  $50 \times 60$  и  $25 \times 30$  авторами бенчмарка по программе SOLID и авторами статьи по программе GIGAN-2D. Из представленных результатов видно, что между приведенными данными, так же, как и для сплава Sn-10% Pb, имеется неплохое качественное согласие.

На рис. 7, 8 (см. также цветную вкладку) приведены профили отклонений концентраций

в сечениях  $H_3$  и  $H_1$ , полученные по программе SOLID, а также по программе GIGAN-2D. Результаты сравнения аналогичны приведенным выше: имеется качественное согласие расчетов по программам SOLID и GIGAN-2D, но численные значения заметно различаются.

## Заключение

Из анализа полученных результатов следует, что качественно они согласуются с аналогичными результатами, представленными авторами бенчмарка. Имеющиеся различия, скорее всего, связаны с отличиями в моделях, различными способами аппроксимации и различными ограничениями по точности на разных этапах расчета. В то же время предложенный алгоритм позволяет перейти к расчетам задач с учетом диффузии при переносе примеси без дополнительных переделок алгоритма.

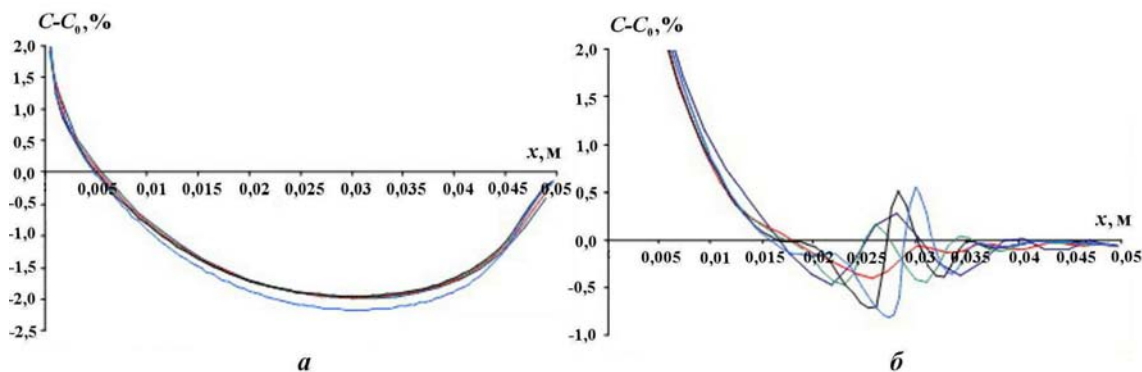


Рис. 4. Профили отклонений концентраций в сечениях  $H_3$  (а) и  $H_1$  (б), полученные по программе SOLID

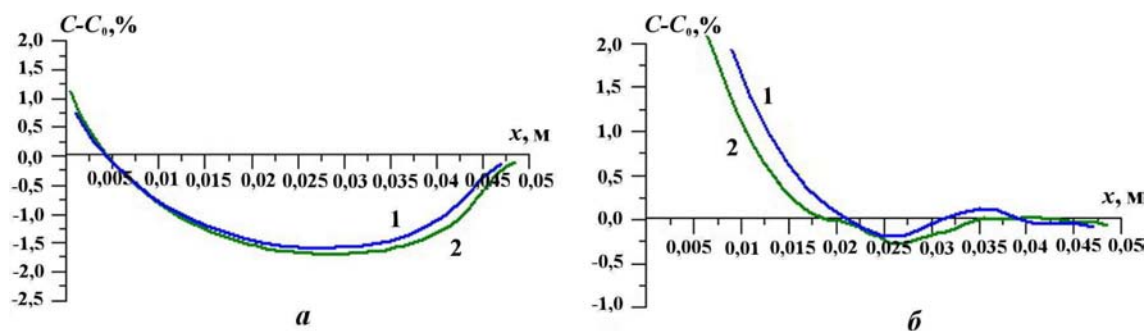


Рис. 5. Профили отклонений концентраций в сечениях  $H_3$  (а) и  $H_1$  (б), полученные по программе GIGAN-2D: 1 — сетка  $25 \times 30$ ; 2 — сетка  $50 \times 60$

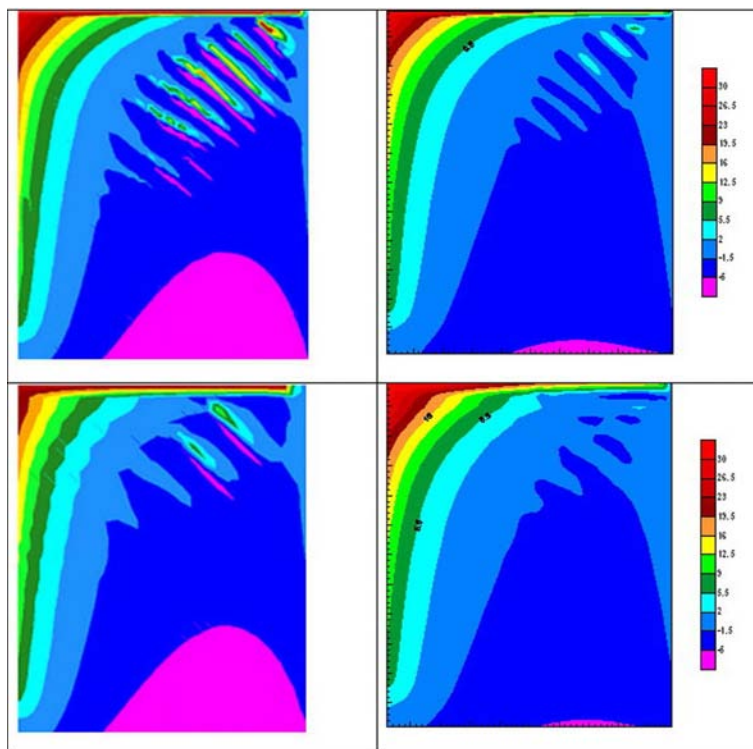


Рис. 6. Сравнение результатов, полученных по программам SOLID (слева) и GIGAN-2D (справа) для Pb-18%Sn: вверху — сетка  $50 \times 60$ ; внизу — сетка  $25 \times 30$

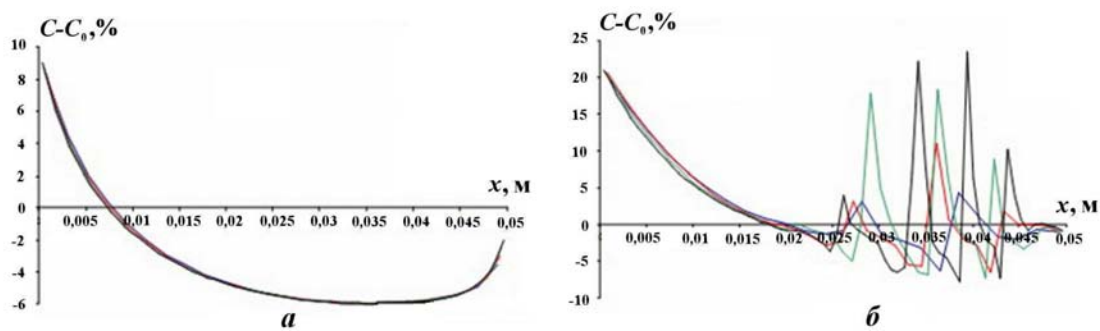


Рис. 7. Профили отклонений концентраций в сечениях  $H_1$  (а) и  $H_3$  (б), полученные по программе SOLID

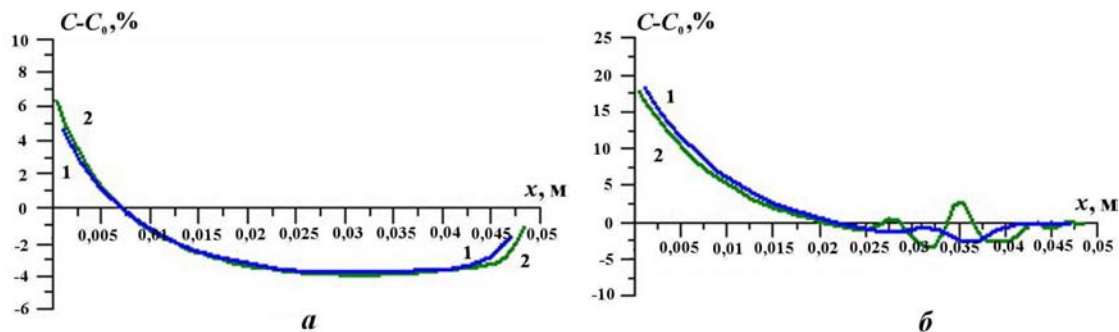


Рис. 8. Профили отклонений концентраций в сечениях  $H_1$  (а) и  $H_3$  (б), полученные по программе GIGAN-2D: 1 — сетка  $25 \times 30$ ; 2 — сетка  $50 \times 60$

Выполненные расчеты показали, что имеется необходимость проведения детального сравнения с результатами, полученными другими авторами, а также результатами экспериментов. Такие сравнения позволят сделать более обоснованные выводы относительно адекватности модели и точности расчетов, а также наметить пути усовершенствования моделей и алгоритмов расчетов сегрегации примесей многокомпонентных расплавов при их кристаллизации.

Работа поддержана грантом РФФИ № 09-08-00844-а.

### Список литературы

1. Гинкин В. П., Забудько М. А., Картавых А. В. и др. Численное моделирование процесса тепломассопереноса с позиции кластерной модели строения расплава // Поверхность. 2004. № 6. С. 93—100.
2. Bellet M., Combeau H., Fautrelle Y. et al. Call for contributions to a numerical benchmark problem for 2D columnar solidification of binary alloys // Int. J. Thermal Sc. 2009. Vol. 48. P. 2013—2016.
3. Гинкин В. П., Ганина С. М., Гинкина О. М. Математическая модель кристаллизации растворов под управляющим воздействием температурного поля на примере выращивания кристаллов // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2010. Вып. 2. С. 64—74.
4. Ginkin V. Methods of solution of convective heat mass transfer at single crystal growth problem // Proc. 2-nd Int. Symposium on Advances in Computational Heat Transfer. Palm Cove, Queensland, Australia. 2001. Vol. 2. P. 1161—1168.

Статья поступила в редакцию 09.10.09.

---