

MODELIZACIÓN DE LA INTERACCIÓN DE PARTÍCULAS CON INTERFASES DE SOLIDIFICACIÓN

M.R. Rosenberger, E.M. Agaliotis, C.E. Schvezov*

Prog. Materiales, Modelización y Metrología, FCEQyN, UNaM.
Azara 1552. (3300) Posadas, Misiones. Argentina
e-mail:schvezov@fceqyn.unam.edu.ar

El campo térmico generado por el movimiento de una interfase de solidificación hacia una partícula esférica fue modelado dinámicamente para estudiar las deformaciones de la interfase en relación con las diferentes propiedades térmicas de la partícula en una matriz sólido-líquida. La simetría del sistema permitió emplear un modelo de simetría axial en dos dimensiones. La simulación se realizó empleando análisis por elementos finitos. Los resultados muestran una deformación cóncava de la interfase cuando la partícula presenta mayor conductividad térmica que la matriz, y una interfase convexa en el caso contrario. El caso límite, cuando matriz y partícula tienen el mismo valor de conductividad térmica la interfase de solidificación es plana. Además, se estudiaron las fuerzas de arrastre que actúan sobre la partícula cuando la interfase de solidificación es plana. Para ello se empleó un modelo de flujo de fluidos en estado estacionario con la partícula ubicada a diferentes distancias de la interfase y con diferentes velocidades de avance de la interfase de solidificación. Los valores obtenidos se compararon con los obtenidos por la ecuación de Stokes modificada. Se utiliza el modelo de Lifshitz-Van der Waals para calcular las fuerzas de repulsión y se observa que, a bajos valores de la fuerza de repulsión la separación de equilibrio para que se produzca el estado estacionario de pushing es menor en el modelo simulado que en el modelo de Stokes, en cambio a mayores valores de la fuerza de repulsión ambos modelos indican una separación de equilibrio aproximadamente iguales, independientemente de la velocidad de la interfase.

Palabras Claves: Elementos Finitos, Solidificación, Materiales compuestos, Interacción Sólido-Fluido

The thermal field of a moving solidification interface towards a spherical particle was dynamically modeled in order to study the deformation of the interface in relation with different thermal properties of particle and matrix. Finite element methods were employed in an axi-symmetric model of the system. The degree of deformation when the particle has a different thermal conductivity than the matrix is presented and discussed. The drag force on a particle being pushed by a crystal was calculated with a fluid flow model. The force was calculated for different pushing configurations and the results compared with the values given by the modified Stokes equation; which show that the model values are slightly larger than those calculated with the equation. This difference predicts an equilibrium separation for pushing lower than that calculated using the modified Stokes equation when a Lifshitz-Van der Waals model of repulsion force is used

Key Word: Computer simulation of solidification, Melt growth, Pushing

I. INTRODUCCIÓN

La interacción de una partícula sólida con una interfase sólido-líquido es un fenómeno que ocurre durante la solidificación de diferentes materiales, tales como, aleaciones metálicas conteniendo partículas nativas, materiales compuestos de matriz metálica conteniendo partículas o fibras como refuerzos y la cristalización de materiales semiconductores, ópticos, optoelectrónicos o biológicos. En todos los casos la interacción determina fuertemente la distribución de las partículas y las propiedades físicas y fisico-químicas del material final. En algunos sistemas consistentes de matriz y partículas ha sido extensamente reportado la ocurrencia de un estado estacionario de desplazamiento de la partícula por el frente de solidificación (pushing).

En estos casos para velocidades de solidificación mayores que una velocidad crítica, las partículas no son desplazadas sino atrapadas y engullidas por el sólido [1-12]. El proceso es complejo debido a la variedad de fenómenos involucrados durante el desplazamiento asociados al flujo, al campo térmico y a la naturaleza de

las fuerzas de repulsión. En todos los casos el problema físico depende de las propiedades, naturaleza y morfología del medio interactuante, la partícula, el fundido, el sólido, y los campos externos, tales como la gravitatorios, térmicos y electromagnéticos [13-30]. Para predecir esta velocidad crítica han sido propuestos varios modelos [2, 3, 6, 27]. Uno de los modelos [27, 28] esta basado en las fuerzas de arrastre debido al flujo de fluidos, la cual fue calculada para diferentes morfologías del sistema partícula e interfase sólido-líquido, y la correspondiente fuerza de repulsión la cual consiste en el modelo de Casimir-Lifshitz-Van der Waals. El modelo dinámico como el estado estacionario es alcanzado y también la velocidad crítica predicha para el atrapado. El objetivo del presente trabajo es desarrollar, en una primera etapa, un modelo tridimensional incluyendo las fuerzas mencionadas arriba, para poder describir y predecir las condiciones en que ocurren la transición desde desplazamiento a atrapamiento. El modelo esta basado en el método de los elementos finitos e incluye las tres componentes:

partícula, líquido fundido y sólido; y el flujo térmico y de fluidos alrededor de la partícula es predicho.

Se incluye aquí la descripción de un modelo desarrollado con el método de elementos finitos para el cálculo de las fuerzas de arrastre isotérmicas y también el modelo térmico utilizado para considerar el efecto de la conductividad térmica en la forma de la interfase. Los resultados del modelo son analizados y en el caso de las fuerzas de arrastre, comparados con valores obtenidos a partir de la ecuación de Stokes modificada.

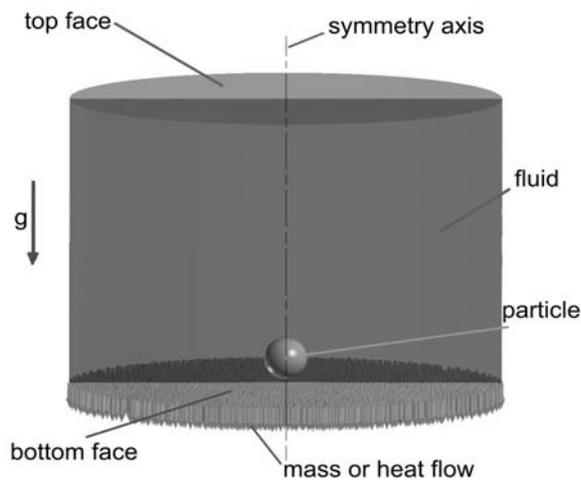


Figura 1: Descripción esquemática del sistema a modelar.

II. MÉTODOS

Descripción del modelo

El sistema a estudiar está constituido por una partícula esférica sólida inmersa en la fase líquida de una matriz que se encuentra solidificándose. En la Fig. 1 se muestra la disposición del sistema.

Cuando la interfase se aproxima a la partícula a distancias muy pequeñas se evidencia la presencia de las fuerzas de repulsión. Esta interacción ocasiona que la partícula se mueva junto con la interfase, este desplazamiento ocasiona una circulación de fluido y, como consecuencia, la generación de fuerzas de arrastre que tienden a acercar la partícula a la interfase. Se establece un equilibrio entre estas fuerzas, el cual mantiene constante la separación entre la partícula y la interfase durante el movimiento de la interfase.

Las fuerzas de repulsión (F_r) involucradas son del tipo de Casimir-Van der Waals. Las fuerzas de arrastre (F_a) son debidas a la viscosidad del fluido. La fuerza de gravedad se considera despreciable frente a estas dos fuerzas.

La resolución del sistema se plantea en dos etapas. En la primera, se considera solamente el campo térmico y, por lo tanto, se realiza un estudio dinámico de la deformación de la interfase que se desplaza hacia una partícula inmóvil. En la segunda, isotérmica, se considera una interfase plana y se realiza el estudio poniendo énfasis en las fuerzas de atracción-repulsión

involucradas, es decir, las interacciones que se generan entre interfase y partícula.

El modelo térmico

En el diseño del sistema se estableció una extracción calórica unidireccional, manteniendo las demás fronteras aisladas, responsable de la solidificación de la matriz.

Además en todas las fronteras se impusieron velocidad igual a cero.

La simulación se realiza con un modelo bidimensional, que proporciona buenos resultados con bajo esfuerzo computacional. En la resolución del problema se utiliza la ecuaciones de conservación de la energía en forma dinámica.

La fase sólida se simuló como un fluido de viscosidad igual a 10^6 veces la viscosidad del líquido. Las propiedades adoptadas para la matriz fueron las correspondientes al Aluminio puro a la temperatura de fusión, la partícula se modeló con igual densidad que la matriz.

Se estudió la forma que toma la interfase debido a la influencia de las propiedades térmicas de la partícula y la matriz. Para ello se consideró la relación entre las conductividades térmicas de la partícula (k_p) y de la matriz (k_m). Tres fueron los casos estudiados donde k_p/k_m es igual a 1.0, 0.1 y 10.0

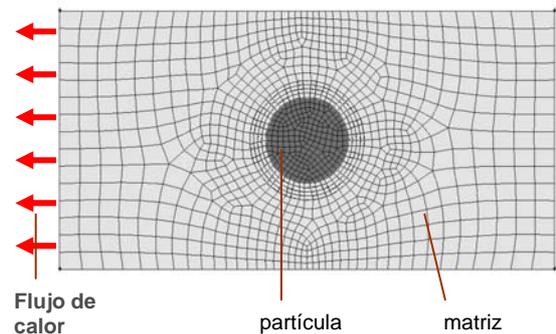


Figura 2: Malla del modelo bidimensional empleada en la etapa diatérmica.

En la modelización se empleó el método de elementos finitos a través de una formulación de residuos ponderados de Galerkin. Se emplearon elementos cuadriláteros con funciones de interpolación de segundo orden para la temperatura. En la discretización del dominio se empleó una malla no estructurada estática de 1000 elementos para la matriz y 300 elementos para la partícula. La malla se refinó en las inmediaciones de la partícula, ver la Fig. 2. La forma y posición de la interfase se determinó siguiendo la isoterma de solidificación del aluminio puro: 933 K.

Para la resolución numérica del sistema de ecuaciones se empleó el método de Newton-Raphson, con una tolerancia del 0.01%. El cálculo dinámico se resolvió mediante Crank-Nicholson con un paso de tiempo variable ajustado mediante Adams-Bashforth [14-16].

El modelo de flujo de fluidos

La etapa isotérmica se resolvió utilizando un modelo de simetría axial, ver Fig. 3, para la situación de estado estacionario de pushing, es decir, cuando la partícula se mueve junto con la interfase manteniendo una separación constante. Por lo tanto, en la simulación se utilizan solamente las ecuaciones de balance de masa y momentum.

El análisis se realiza centrando el interés en los cálculos de las fuerzas de arrastre sobre la partícula debidas a la circulación del fluido.

En la interfase se impuso una velocidad de fluido constante, perpendicular a la misma hacia afuera, dejando sin imposición los demás contornos. Sobre la superficie de la esfera se impone la condición de no deslizamiento.

El fluido se considera Newtoniano y en flujo laminar, ya que el número de Reynolds (Re) respecto al diámetro de la partícula, es mucho menor a 1.

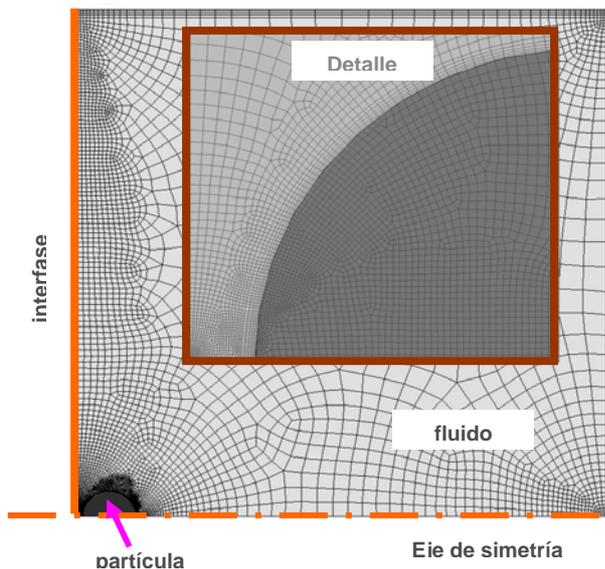


Figura 3: Malla del modelo de simetría axial.

El modelo de simetría axial fue previamente comparado contra un modelo tridimensional, ver Fig. 4.

En la malla del modelo tridimensional se emplearon elementos tetraédricos con funciones de interpolación lineales para la velocidad y para la presión, utilizando el método de Petrov-Galerkin. En total se emplearon aprox. 200000 elementos, refinando en la zona cercana a la partícula

Para el modelo de simetría axial se emplearon entre 30000 y 50000 elementos cuadriláteros, con funciones de interpolación de segundo orden para la velocidad y de primer orden para la presión, por lo tanto el método de Galerkin es empleado.

La resolución del sistema de ecuaciones fue a través del método de Picard, para los modelos de simetría axial y mediante un método desacoplado para el modelo tridimensional, donde las variables se resuelven individual y secuencialmente, mediante eliminación gaussiana, alcanzando la solución en forma iterativa.

En el diseño del modelo se utilizó un radio de partícula de 0,050 mm, ubicada a seis distancias diferentes desde la interfase (h), variando entre $h_{mín}$ y 2R. Siendo $h_{mín}$ la mínima distancia que se puede considerar para que el fluido mantenga las propiedades que lo definen, 10^{-8} m, y R el radio de la partícula. Para cada posición se construyó una malla diferente.

En cada posición se modelaron 6 velocidades de interfase. Se calcularon las velocidades para 0.015%, 0.15%, 1.5%, 50%, 100%, 200% de V_c considerando flujo laminar y la velocidad crítica (V_c) igual a $2,22 \times 10^{-6}$ m/s. Siendo V_c la velocidad en la cual la repulsión crítica no se produce y por encima de la cual no se observa pushing.

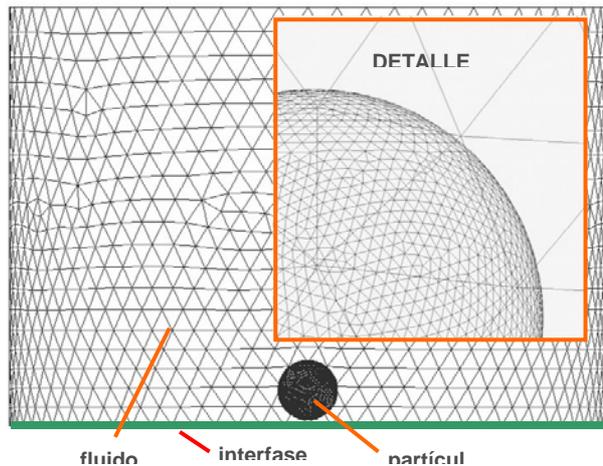


Figura 4: Malla sobre la superficie externa del modelo en tres dimensiones..

Modelos analíticos

Una modificación de la fórmula de Stokes se emplea para estimar la fuerza de arrastre sobre una esfera, cuya expresión es:

$$F_a = 6 \pi \mu v_p \frac{R^2}{h} \quad (1)$$

Donde F_a : es la Fuerza de arrastre, μ : es la viscosidad, v_p : velocidad de la interfase, R : radio de la partícula, h : distancia interfase-partícula.

La fórmula de Casimir-Lifshitz-Van der Waals se emplea para calcular los valores de la fuerza de repulsión, cuya expresión para una interfase plana es:

$$F_r = \pi B_3 \frac{R}{h^3} \quad (2)$$

Donde F_r : es la fuerza de repulsión, B_3 : es la constante de Lifshitz-Van der Waals, R : radio de la partícula, h : distancia interfase-partícula

III. RESULTADOS Y DICUSIÓN

Campo térmico

De este análisis se puede concluir que el campo térmico que se genera por el movimiento de una interfase de solidificación hacia una partícula esférica

sólida presenta deformaciones de la interfase en relación con las propiedades térmicas de la partícula en una matriz sólido-líquida.

Situándonos en la partícula se observa, en la Fig. 5(a) una deformación convexa de la interfase cuando la conductividad térmica de la partícula es menor que la matriz, y en la Fig. 5(b) una interfase cóncava cuando la conductividad térmica de la partícula es mayor que la matriz.

En cambio, en la Fig. 5(c) se observa que la interfase no sufre deformación, se mantiene plana. Esto ocurre cuando la conductividad térmica de la partícula y la matriz son iguales.

Validación del modelo de simetría axial

De la comparación de las simulaciones del modelo tridimensional y de simetría axial se obtienen los siguientes resultados:

En ambos modelos se verifica el mismo patrón de flujo y no se observan zonas de recirculación; la máxima velocidad coincide en magnitud, dirección y posición; las componentes radiales y axiales de la velocidad son similares.

Las similitudes de los flujos en ambos modelos pueden confirmarse calculando la fuerza de arrastre sobre la partícula, así se obtienen: $2,952 \times 10^{-13}$ N en el modelo en tridimensional y $2,956 \times 10^{-13}$ N en el modelo de simetría axial. Mostrando una diferencia de 0,13%

Los tiempos de cálculo demandado en la resolución del problema fueron aprox. 5 horas para el modelo tridimensional y de 20 minutos para el modelo de simetría axial, en una computadora PC, Pentium IV de 3.2 GHz y 2 GB de RAM (400Mhz).

Por lo tanto, se elige, en virtud de la exactitud y reducida demanda de tiempo, el modelo de simetría axial para la simulación y cálculo de las fuerzas de arrastre que actúan sobre una partícula que se utilizará

v, se encontró dependencia sólo con h en la relación F_{aFEM} / F_{aSM} . Los resultados de la comparación se muestran en la Tabla 1 donde el error se calcula a partir de esta relación a diferentes velocidades.

En la Tabla 1 se observa que, a medida que h disminuye, la relación entre las fuerzas de arrastre tiende a 1. De esta manera se puede detectar el ámbito de validez de la aproximación de Stokes para predecir la fuerza de arrastre. En general da una buena predicción para valores de h tendiendo a cero.

Tabla 1: Relación entre fuerzas de arrastre según la posición de la partícula, h. R = radio partícula.

Separación, h	F_{aFEM} / F_{aSM}	Error (95%)
2 x R	3.1453	0.0040
1 x R	2.1362	0.0015
0.2 x R	1.2676	0.0006
0.1 x R	1.1497	0.0034
0.05 x R	1.0844	0.0015
0.0002 x R	1.0015	0.0003

Al comparar las F_{aSM} y F_{aFEM} con la F_r , se encontró que la separación de equilibrio (h_e) es menor cuando se emplea las F_{aFEM} , independientemente de la velocidad de la interfase de solidificación. Los valores de h_e se calcularon para distintas condiciones de velocidad de la interfase y son mostrados en la Tabla 2.

Los datos de h_e obtenidos a partir de la simulación se correlacionaron con la velocidad de la interfase, obteniéndose la siguiente relación:

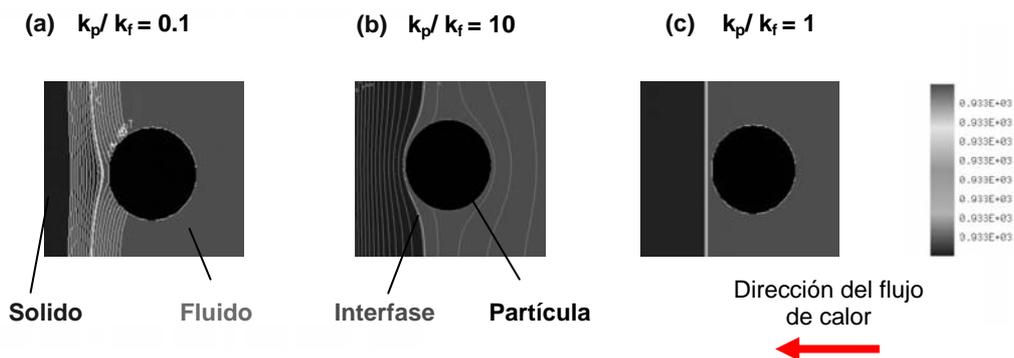


Figura 5: Campo térmico generado por el movimiento de una interfase de solidificación

en la continuación del trabajo.

Fuerzas de arrastre

Empleando el modelo de simetría axial se calcularon y compararon las fuerzas de arrastre (F_{aFEM}) sobre la partícula del modelo de elementos finitos y los valores de la fuerza de arrastre según la formula de Stokes modificada (F_{aSM}). De las dos variables de diseño, h y

$$h_e = 4.965 \times 10^{-14} \frac{1}{v_p^{0.9445}} \quad (3)$$

similar a la ecuación (4), que surge de igualar las expresiones (1) y (2), que se detalla a continuación.

$$h_e = 2,22 \times 10^{-14} \frac{1}{v_p} \quad (4)$$

Tabla 2: Separaciones de equilibrio calculadas por simulación ($h_{e_{FEM}}$) y por Stokes-Modificado ($h_{e_{SM}}$)

v_i [m/s]	$h_{e_{FEM}}$ [m]	$h_{e_{SM}}$ [m]	Fa_{FEM} [N]	Fa_{SM} [N]	Fa_{FEM} / Fa_{SM}
3,30E-10	2,732E-05	6,734E-05	1,380E-15	3,464E-16	3,9839
3,30E-09	5,540E-06	6,734E-06	4,510E-14	3,464E-14	1,3020
3,30E-08	6,734E-07	6,734E-07	3,540E-12	3,464E-12	1,0220
1,11E-06	2,000E-08	2,002E-08	3,930E-09	3,919E-09	1,0028
2,22E-06	1,000E-08	1,001E-08	1,570E-08	1,568E-08	1,0015

Al graficar los valores obtenidos a partir de la simulación y la regresión mostrados en la Fig. 6, se observa un buen ajuste en el rango de velocidades considerado.

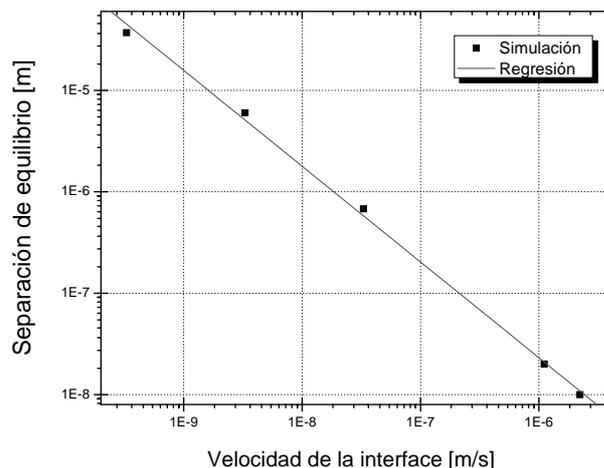


Figura 6: Separación de equilibrio calculados por simulación y resultados de la regresión

IV. CONCLUSIONES

Del análisis del campo térmico se infiere que la forma de la interfase depende de la relación entre las conductividades térmicas de la partícula y la matriz. La interfase es plana cuando las conductividades son iguales, cóncava cuando la conductividad de la partícula es mayor y convexa en el caso opuesto.

De la comparación del modelo tridimensional y de simetría axial se infiere concordancia en el campo de velocidades y en las fuerzas de arrastre. Por lo tanto el modelo de simetría axial resulta adecuado para la simulación.

De la comparación de las fuerzas de arrastre sobre una partícula obtenidas calculadas por la simulación y por la expresión de Stokes-Modificada se observa que, la fuerza simulada es siempre mayor que la de Stokes-Modificada. La relación entre ambas tiende a 1 cuando

la separación entre interfase y partícula disminuye, siendo independiente de la velocidad de la interfase.

Se obtuvo una expresión que relaciona la separación de equilibrio para el estado estacionario de pushing con la velocidad de la interfase, comparable a la obtenida de igualar las expresiones analíticas de fuerzas de repulsión y fuerzas de arrastre.

V. REFERENCIAS

- Pikunov, M. K. in "Metallurgizdat". Ed. Moscow. 56-67 (1957).
- Uhlmann, D. R., Chalmers, B. and Jackson, K. A., J. Applied Physics, 35, 2986-2993 (1964).
- Bolling, G. F. and Cisse, J., "A theory for the interaction of particles with a solidifying front", J. Crystal Growth, 10, 56-66 (1971).
- Neumann, A.W., van Oss, D.J., Szekely, J., "Thermodynamics of Particle Engulfment", Kolloid Z.U.Z. polymere, 251, 415-423 (1973).
- Omenyi, S.N., Neumann, A.W., "Thermodynamic Aspects of Particle Engulfment by Solidifying Melts", J. of Ap. Phys, 47, 3956-3962 (1976).
- Chernov, A. A., Temkin, D. E., Mel'nikova, S. M., "Theory of the capture of solid inclusions during the growth of crystals from the melt", Sov. Phys. Crystallogr., 21 (4), 369-379 (1976).
- Cisse, J. and Bolling, G. F., "A theory for the interaction of particles with a solidifying front", J. of Crystal Growth, 10, 67-76 (1971).
- Schvezov, C., "Modelización dinámica de la interacción de partículas con interfases sólido líquido durante la solidificación", Anales de la SAM'98-IBEROMET V., Tomo I, 57-60 (1998)
- Schvezov, C.E., "Dynamic Calculations for Particle Pushing. Solidification 1999". Hofmeister, W. H., Rogers, J. R., Singh, N. B., Marsh, S. P. and Vorhes, P. W., Ed., TMS, 251-261 (USA 1999).
- Chernov, A. A. and Temkin, D. E., "1976 Crystal Growth and Materials", Kaldis, E. and Sheel, H. J., Ed., 3-77, (North Holland, Amsterdam, 1977)
- Shangguan, D., Ahuja, S. and Stefanescu, D. M., "An Analytical Model for the Interaction between an Insoluble Particle and an Advancing Solid/Liquid Interface", Met. Trans., A,23, 669-680 (1992).
- Schvezov, C. E. and Weinberg, F., "Interaction of Iron Particles with a Solid-Liquid Interface in Lead and Lead-Alloys", Met. Trans. B, 16, 367-375 (1985).
- Fasoyinu, Y. and Schvezov, C. E., Weinberg, F., "Interaction of ceramic particles with an advancing solid-liquid interface in aluminum based composites", Int. Sol. Proc. Pergamon. 243-252 (1990).
- Fidap 8. Fidap User's Manual. Fluent Inc. Lebanon New Hampshire. 1998
- Chapra, S.C., Canale, R.P., in "Numerical methods for engineers", McGraw-Hill, Ed., 2002.
- Nieves Hurtado, A., Dominguez Sanchez, F.C., "Métodos numéricos aplicados a la Ingeniería", C.E.C.S.A., Ed., 2002.
- Han, Q., Hunt, J.D., "Particle pushing: critical flow rate required to put particles into motion", J. Crystal Growth, 152, 221-227 (1995)
- Chang, S. and Stefanescu, D. M., "A model for inverse segregation: The case of directionally solidified Al-Cu alloys", Acta Materialia, 44, 2227-2235 (1996).
- Sen, S., Dhindaw, B. K., Stefanescu, D. M., Catalina, A. and Curreri, P. A., "Melt convection effects on the critical

- velocity of particle engulfment”, *J. Crystal Growth*, 173, 574-584 (1997).
- 20- Kim, J. K. and Rohatgi, P. K., “The effect of the diffusion of solute between the particle and the interface on the particle pushing phenomena”, *Acta mater.* 46, 1115-1123 (1998).
- 21- Sen, S., Juretzko, F., Stefanescu, D. M., Dhindaw, B. K., Curreri, P., “In situ observations of interaction between particulate agglomerates and an advancing planar solid/liquid interface microgravity experiments”, *J. Crystal Growth*, 204, 238-242 (1999).
- 22- Catalina, A.V., Mukherjee, S., Stefanescu, D., “A Dynamic Model for the Interaction between a Solid Particle and an Advancing Solid/liquid interface”, *Metall. Mater. Trans. A*, 31, 2559-2568 (2000).
- 23- Andris, V., Bune, V., Sen, S., Mukherjee, S., Catalina, A. and Stefanescu, D. M., “Effect of melt convection at various gravity levels and orientations on the forces acting on a large spherical particle in the vicinity of a solidification interface”, *J. Crystal Growth*, 211, 446-451 (2000).
- 24- Rempela, A.W., Worster, M.G., “Particle trapping at an advancing solidification front with interfacial-curvature effects”, *J. Crystal Growth*, 223, 420-432 (2001).
- 25- Udaykumar, H.S., Mao, L., “Sharp-Interface Simulations of Dendritic Solidification of Solution”, *Int. J. Heat, Mass Transfer*, 45, 4793 (2002).
- 26- Hadji, L., “Modelling and Asymptotic Analysis of Particle-Interface Interaction Mathematical and Computer Modelling,”, 36, 147-156 (2002).
- 27- Garvin, J.W., Udaykumar, H.S., “Particle–solidification front dynamics using a fully coupled approach, Part I: methodology”, *J. Crystal Growth*, 252, 451–466 (2003).
- 28- Garvin, J.W., Udaykumar, H.S., “Particle-solidification front dynamics using a fully coupled approach, part II: comparison of drag expressions”, *J. Crystal Growth*, 252, 467–479 (2003).
- 29- Kolbe, M., Liu, X.R., Volkmann, T., Röstel, R., Galenko, P.K., Eggeler, G., Wei, B., Herlach, D.M., “Interaction of solid ceramic particles with a dendritic solidification front”, *Materials Science and Engineering A*, 375–377, 524–527 (2004).
- 30- Garvin, J.W., Udaykumar, H.S., “Drag on a particle being pushed by a solidification front and its dependence on thermal conductivities”, *J. Crystal Growth*, 267, 724–737 (2004).