

# Pb-Sn 合金定向凝固斑点偏析的数值模拟

崔家骏, 李宝宽, 牛 冉, 王 卓

(东北大学冶金学院, 辽宁沈阳 110819)

**摘要:** 为了探究二元合金垂直定向凝固过程中斑点偏析的形成过程, 建立了定向凝固条件下速度场、溶质场及温度场耦合求解的数学模型, 并利用该模型模拟了Pb-10wt%Sn合金圆柱形铸锭内的定向凝固过程。结果表明, 造成斑点偏析的流动起源于液相区而非糊状区内, 富含溶质的流体不断向糊状区通道处流动聚集, 并通过糊状区从液相区持续补充通道内的流动。凝固结束后在铸锭内部形成了细长的溶质富集通道, 顶部斑点分布在以铸锭半径的1/2为半径的圆弧附近, 这一结果由实际生产铸锭的斑点偏析情况得以验证。

**关键词:** Pb-Sn合金; 定向凝固; 斑点偏析; 数值模拟

## 作者简介:

崔家骏(1997-), 男, 硕士, 主要研究方向为高温合金定向凝固过程的通道偏析。  
E-mail: cuijiajun\_neu@163.com

## 通讯作者:

李宝宽, 男, 教授, 博士生导师。电话: 024-83672216, E-mail: libk@mail.neu.edu.cn

中图分类号: TG111.4;

TG146.1<sup>+</sup>4

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2019)

03-0244-06

## 基金项目:

国家自然科学基金-辽宁联合基金资助项目(U1508214)。

## 收稿日期:

2018-11-16 收到初稿,

2018-12-21 收到修订稿。

随着科技水平的不断进步, 当前军工和航空航天等高精尖领域急需一批在高温高压等严苛条件下仍能正常工作的关键机械部件。如果制造不当, 这些部件会发生蠕变断裂和热疲劳失效。定向凝固技术有效控制了晶粒形状, 产生了柱状微结构, 其中所有晶界沿铸件的纵向延伸, 这大大提高了铸件的疲劳寿命, 蠕变抗力和中温塑性<sup>[1]</sup>, 因而成为合金生产过程中的主要工艺。然而在定向凝固合金铸件中, 经常会产生一种通道偏析, 在垂直定向凝固条件下又称斑点偏析。可以观察到这些偏析为一些细长的通道, 排列在铸件的重力方向上, 其中会有溶质元素的大量富集, 严重影响铸件的综合性能, 甚至导致其直接报废。为优化定向凝固工艺参数, 减少这种凝固缺陷, 有必要对其形成过程进行研究。

在斑点偏析形成的试验研究中, Copley等<sup>[2]</sup>最早认识到底部冷却铸件凝固过程中双扩散对流的存在及其重要影响, 他们基于对NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O系垂直定向凝固过程的直接观察, 指出糊状区中由于密度倒置引起的向上射流是造成斑点偏析的根本原因。Wang<sup>[3]</sup>和Fredriksson<sup>[4]</sup>分别采用不同的冷却和定向凝固方式对Pb-Sn合金的内部偏析情况进行了实验研究。在此基础上, 钟万里等<sup>[5]</sup>采用NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O实验模拟了二元合金的通道偏析。在数值模拟方面, 1991年Felicelli等人<sup>[6]</sup>模拟了定向凝固的Pb-Sn合金中的通道形成过程, 开启了利用数值模拟方法研究通道偏析的先河。此后, Frueh等<sup>[7]</sup>采用有限元法模拟了Pb-Sn合金垂直定向凝固过程中的通道偏析形成。在国内, 韩志强<sup>[8]</sup>、曹海峰等<sup>[9]</sup>分别对不同二元合金和镍基高温合金垂直定向凝固过程的通道偏析进行了模拟研究。

到目前为止, 大部分斑点偏析预测模型都采用简化后的二维几何模型。尽管从二维模型中已经学到了很多, 但是通道形成显然是立体现象, 糊状区通过液相区从各个方向补充通道内的流动。本研究基于连续模型建立了描述二元合金凝固过程传输现象的数学模型, 并利用该模型模拟了Pb-10wt%Sn合金垂直定向凝固过程的热-溶质对流情况及斑点偏析形成过程, 将模拟结果与实际生产结果进行对比, 验证了数学模型的可靠性。

## 1 数学模型

### 1.1 假设及简化

数学模型的建立基于Bennon<sup>[10]</sup>提出的连续介质模型, 模型中引入如下假设:

(1) 液相流动状态为不可压缩层流; (2) 固液相界面处于热力学平衡; (3) 糊状区近似为多孔介质; (4) 固相内溶质无扩散, 固相静止且无应变; (5) 动量守恒方程中浮力项采用Boussinesq假设, 其余项中密度为常数。

## 1.2 控制方程

在以上假设及简化的基础上, 提出如下控制方程。

连续性方程:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{V}) = 0 \quad (1)$$

动量守恒方程:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u) + \nabla \cdot (\rho \vec{V} u) = \nabla \cdot (\mu \frac{\rho}{\rho_l} \nabla u) - \frac{\partial p}{\partial x} - \frac{\mu}{K} \frac{\rho}{\rho_l} u \quad (2)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho v) + \nabla \cdot (\rho \vec{V} v) = \nabla \cdot (\mu \frac{\rho}{\rho_l} \nabla v) - \frac{\partial p}{\partial y} - \frac{\mu}{K} \frac{\rho}{\rho_l} v \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho w) + \nabla \cdot (\rho \vec{V} w) = \nabla \cdot (\mu \frac{\rho}{\rho_l} \nabla w) - \frac{\partial p}{\partial z} - \frac{\mu}{K} \frac{\rho}{\rho_l} w + S_g \quad (4)$$

式中:  $S_g$ 表示糊状区温度和溶质浓度引起的密度变化对流动造成的影响, 可由下式得出:

$$S_g = \rho_s g [\beta_T (T - T_{ref}) + \beta_C (C_1 - C_{1,ref})] \quad (5)$$

能量守恒方程:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho h) + \nabla \cdot (\rho \vec{V} h) = \nabla \cdot (\frac{k}{c_s} \nabla h) + \nabla \cdot [\frac{k}{c_s} \nabla (h_s - h)] - \nabla \cdot [\rho (h_1 - h) \vec{V}] \quad (6)$$

溶质守恒方程:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho C) + \nabla \cdot (\rho \vec{V} C) = \nabla \cdot (\rho D \nabla C) + \nabla \cdot [\rho D \nabla (C_1 - C)] - \nabla \cdot [\rho (C_1 - C) \vec{V}] \quad (7)$$

各式中:  $u$ 、 $v$ 、 $w$ 分别为流体速度 $\vec{V}$ 在 $x$ 、 $y$ 、 $z$ 方向上的分量;  $\rho$ 为密度;  $K$ 为糊状区渗透率;  $T$ 为温度;  $C$ 为溶质质量分数;  $\beta_T$ 为温度膨胀系数;  $\beta_C$ 为溶质膨胀系数;  $h$ 为焓;  $k$ 为平衡分配系数;  $c$ 为比热容;  $D$ 为溶质扩散系数。下标 $s$ 表示固相,  $l$ 表示液相,  $ref$ 表示参考值。

糊状区中, 能量守恒方程和溶质守恒方程通过图的热平衡关系耦合:

$$f_s = \frac{1}{1-k} \left[ \frac{T - T_{liq}}{T - T_m} \right] \quad (8)$$

式中:  $f_s$ 为固相分数,  $T_{liq}$ 为液相线温度,  $T_m$ 为溶质的熔点。糊状区内近似为多孔介质, 其渗透率 $K$ 由Kozeny-Carman公式描述:

$$K = K_0 \frac{f_l^3}{(1-f_l)^2} \quad (9)$$

式中:  $f_l$ 为液相分数,  $K$ 是由糊状区枝晶尺寸确定的参数, 此处取 $3 \times 10^{-11}$ 。

## 2 模拟条件

采用二阶迎风格式对各控制方程进行离散, 基于Fluent软件中压力基求解器并利用SIMPLE算法实现了对速度场, 溶质场及温度场的耦合求解。计算区域尺寸及模拟条件如图1所示, 铸锭高 $H$ 为0.1 m, 半径 $R$ 为0.05 m。为了更贴近生产实际, 初始温度场设为沿高度方向线性分布, 温度梯度 $G$ 为1 000 K/m; 底部初始冷却温度 $T_0$ 为577 K, 冷却速率 $r$ 为0.1 K/s, 溶质场在边界上与外界无交换, 速度场各边界处理为无滑移条件。顶部边界冷却条件满足:  $\partial T / \partial z = G$ , 侧面绝热。总网格数为292 500, 计算时间步长取0.01 s, 计算所用到的合金主要物性参数如表1所示。

## 3 计算结果及讨论

由于本次偏析过程产生的通道均位于铸锭内部, 从外表面无法观察到, 因此选取铸锭内部的两个截面作为研究对象, 两截面分别为 $X = -0.015$  1 m和 $X = 0.014$  9 m, 这两个截面与铸锭顶部最后形成的斑点相对应。图2为冷却600 s时的溶质场、流场及温度场情况。

其中溶质分布图中透明面代表液相面, 由于此时尚无完全凝固的区域, 所以铸锭中仅存在液相区和糊状区两个区域。可以看到在糊状区内部已经形成了两条较细的通道, 通道中的溶质浓度明显高于其他区域。从流线图中可以看到最初的流动起源于液相区内, 并非像Copley等<sup>[2]</sup>提出的起源于糊状区内部, 这也验证了Sample等<sup>[11]</sup>的实验结果: 流体不断从液相区向糊状区通道处流动聚集, 而在通道内部流动是竖直向上的。

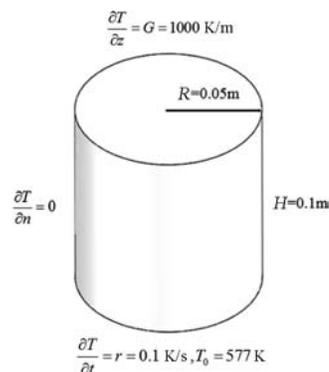


图1 计算区域及边界条件示意图

Fig. 1 Schematic of calculation domain with the boundary conditions

速度矢量图2c中可以观察到在很多位置处都形成了向上的射流,这表明此时在铸锭内部已经形成了上下小的密度倒置,因而在浮力作用下诱发了向上的自然对流,这些射流产生的位置也就是此时通道出现的位置。下方参考面是液相分数为0.9的等值面。值得注意的是,在向上射流发展的部位,液相线轮廓呈现向下凹曲的形状, Schneider等<sup>[12]</sup>的模拟结果也有同样的特征出现,这些向下的凹曲被Felicelli等<sup>[13]</sup>形象地称为“火山口”。从2d中可以看出,凝固初期等温线基本水平,由下向上温度单调递增。

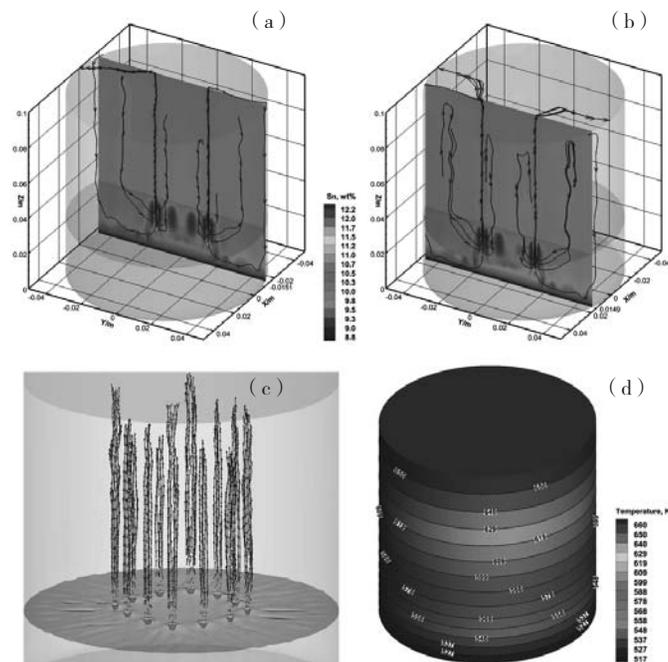
图3为冷却1 500 s时的溶质场、流场及温度场。在3a、b中位于下方的透明面为固相面,该面以下为固相区。可以看到糊状区内部通道较之前有明显的增长,其中溶质也更加富集。这主要是由于通道的形成使得

其周围的渗透率增大,流动的阻力减弱,富含溶质的液相如流线图所示继续向通道处汇聚,并通过糊状区从液相区补充通道内的流动。图3c中参考面仍是液相分数为0.9的等值面,可以看到每个“火山口”对应的向上射流,不同位置处的射流强度也不同。不难发现此时射流较强的四个位置正是两个研究截面上四个稳定增长通道的位置,随着凝固过程的进行,其他位置处的通道在局部流动的作用下逐渐减弱甚至消失。从图3d中可以观察到此时等温线在流动作用下出现了明显弯曲。由于热扩散的速度远大于溶质扩散的速度,向上流动的液体温度很快接近其周围液相的温度,而成分却仍高于周围液相的成分,这样的温度分布也大大促进了通道的进一步发展。

图4为凝固结束(3 000 s)时铸锭内的斑点偏析情

表1 计算所采用的Pb-10wt%Sn合金热物性参数  
Table 1 Thermo-physical properties of Pb-10wt%Sn alloy for calculation

密度, $\rho$ /( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )	比热容, $c$ /( $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ )	导热系数, $\lambda$ /( $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ )	动力粘度, $\mu$ /( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	溶质扩散系数, $D$ /( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )	相变潜热, $h_f$ /( $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$ )	热膨胀系数, $\beta_T$ /K <sup>-1</sup>
$1.01 \times 10^4$	167	18.2	$2.5 \times 10^{-3}$	$3 \times 10^{-9}$	$3.76 \times 10^4$	$1.2 \times 10^{-4}$
液相线斜率, $m$ /[K · (wt%) <sup>-1</sup> ]	平均分配 系数, $k$	溶质膨胀系数, $\beta_c$ /(wt%) <sup>-1</sup>	参考温度, $T_{\text{ref}}$ /K	参考质量分数, $C_{\text{ref}}$	共晶温度, $T_c$ /K	熔化温度 $T_m$ /K
-2.33	0.31	$5.15 \times 10^{-3}$	577	10	456	600



(a)  $X=-0.0151$  m截面溶质分布及流线图; (b)  $X=0.0149$  m截面溶质分布及流线图; (c) 速度矢量图; (d) 等温线示意图

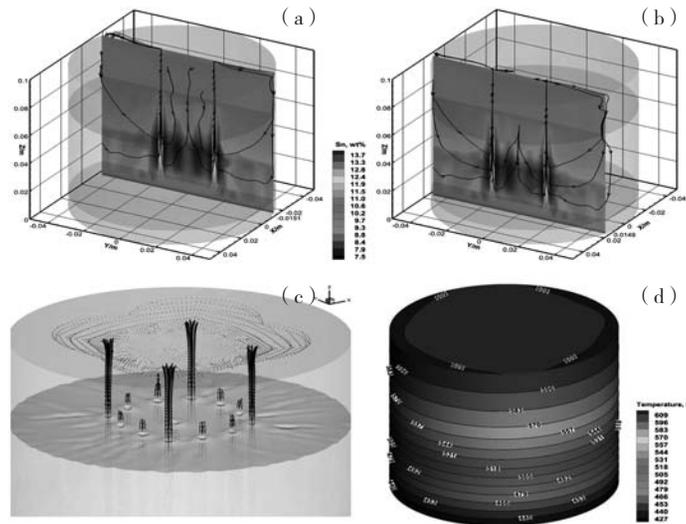
图2 凝固600 s时计算结果

Fig. 2 Results at solidification time  $t=600$  s

况。从图4a、b中可以看出凝固过程结束后两个截面上均出现了细长的通道，并且与4c中较为明显的4个斑点的位置相对应。结合溶质浓度标尺不难发现凝固结束后顶部4个斑点处偏析最为严重，最大偏析度约为1.6。顶部这些斑点中最大的直径约为5 mm左右，最小的约为3 mm左右。另外从图4c中可以观察到，这些斑点都分布在以 $R/2=0.025$  m为半径的圆弧附近。由于此时已经凝固完全，因此等温线基本水平。

为了更加直观地反应凝固结束后铸锭内部的偏析情况，在两截面上选定了0.04 m和0.08 m两个高度来观察偏析度的变化，如图5所示。

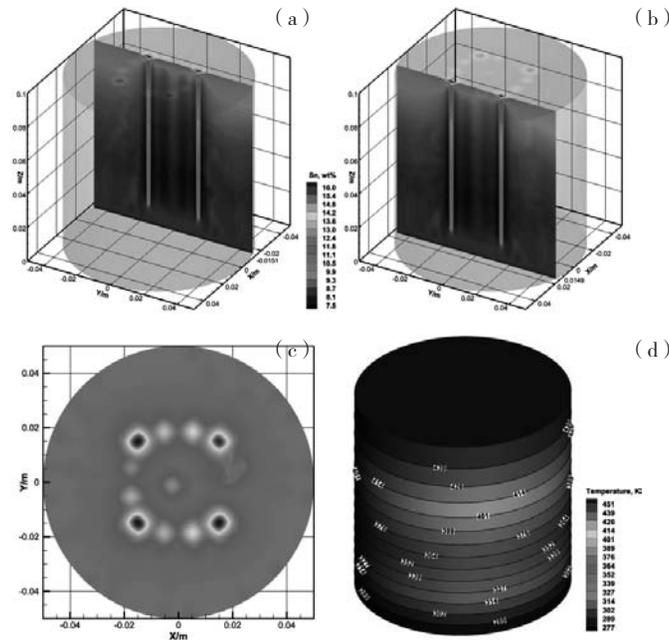
可以看到在0.04 m高度处最大偏析度为1.25左右，而在0.08 m高度处最大偏析度约为1.4。每个高度上偏析度最大的区域即为通道所对应的位置，并且铸锭内部越向上偏析越严重。



(a)  $X=-0.0151$  m截面溶质分布及流线图；(b)  $X=0.0149$  m截面溶质分布及流线图；(c) 速度矢量图；(d) 等温线示意图

图3 凝固1 500 s时计算结果

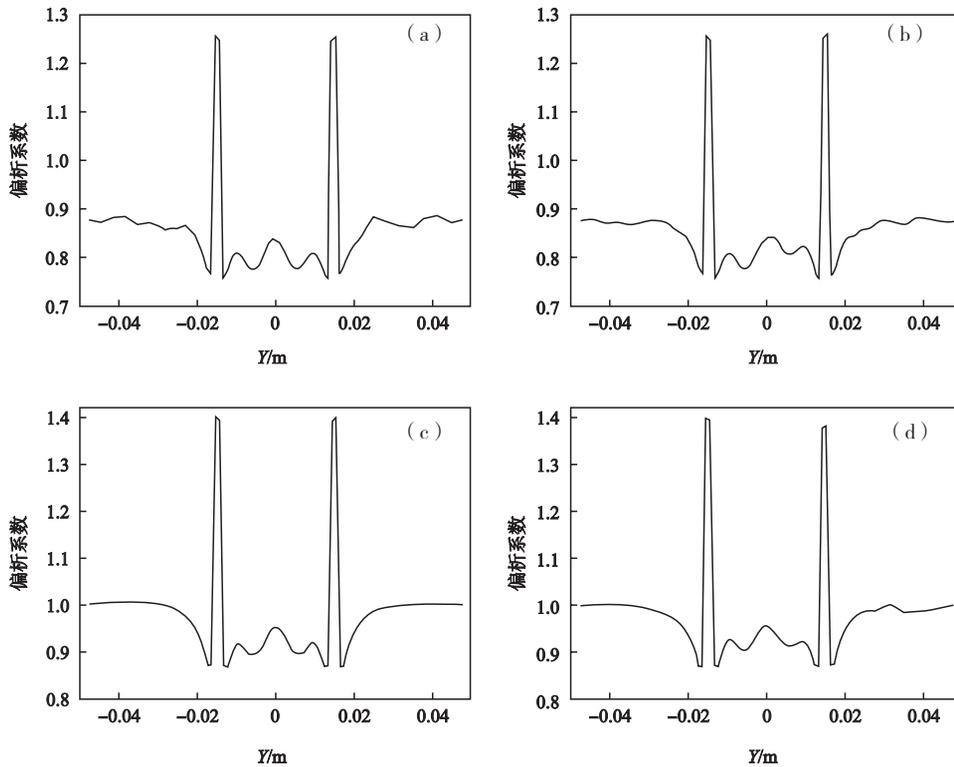
Fig. 3 Results at solidification time  $t=1500$  s



(a)  $X=-0.0151$  m截面溶质分布；(b)  $X=0.0149$  m截面溶质分布；(c) 铸锭顶部斑点情况；(d) 等温线示意图

图4 凝固结束时计算结果

Fig. 4 Results at the end of solidification



(a)  $Z=0.04$  m,  $X=-0.0151$  m; (b)  $Z=0.04$  m,  $X=0.0149$  m; (c)  $Z=0.08$  m,  $X=-0.0151$  m; (d)  $Z=0.08$  m,  $X=0.0149$  m

图5 凝固结束后偏析度情况

Fig. 5 Segregation coefficient after solidification

## 4 结果验证

图6是工厂实际生产的Pb-Sn合金铸锭的斑点偏析情况，凝固结束后在顶部也形成了很多斑点，这些斑点的实际尺寸与模拟结果中的尺寸相差不大。可以观察到这些斑点的分布其实是有律可循的，也大多分布在以铸锭半径的1/2为半径的圆弧附近，这个结果证明了本研究所建数学模型是可靠的，完全可以用来预测实际生产过程中的斑点偏析。

## 5 结论

(1) 通过对圆柱形铸锭内Pb-10wt%Sn合金的垂直定向凝固过程进行模拟研究，得到了凝固过程中的溶质场、流场和温度场并对其进行相关分析。凝固结束后在铸锭顶部出现了若干斑点，最大斑点的直径约为5 mm左右，最小的约为3 mm左右。

(2) 凝固过程结束后，顶部四个斑点处的偏析度最大，约为1.6。这些斑点大都分布在以 $R/2$ 为半径的圆弧附近，这一结果由实际生产铸锭的斑点偏析情况得以验证，证明了本研究所建数学模型可以用来预测实际生产过程中的斑点偏析。

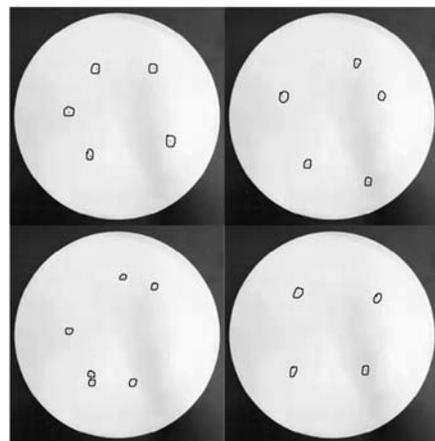


图6 实际生产铸锭的斑点偏析

Fig. 6 Freckle defect in the produced ingots

(3) 造成斑点偏析的强烈的液相流动并非起源于糊状区内部，而是产生于液相区内，富含溶质的流体不断向糊状区通道处流动聚集，并通过糊状区从液相区持续补充通道内的流动。

**参考文献:**

- [1] 汤国兴, 毛卫民, 刘永峰. 定向凝固技术的发展与应用 [J]. 中国铸造装备与技术, 2007 (2): 11-16.
- [2] COPLEY S M, GIAMEI A F, JOHNSON S M, et al. The origin of freckles in unidirectionally solidified castings [J]. Metallurgical Transactions, 1970, 1 (8): 2193-2204.
- [3] WANG L, LAXMANAN V, WALLACE J F. Gravitational macrosegregation in unidirectionally solidified Lead-tin alloy [J]. Metallurgical Transactions A, 1988, 19 (11): 2687-2694.
- [4] FREDRIKSSON H, NILSSON S O. On the formation of macrosegregations in ingots [J]. Metallurgical Transactions B, 1978, 9 (1): 111-120.
- [5] 钟万里, 刘彬, 胡治宁, 等. 高温合金定向凝固过程中通道偏析的物理模拟研究 [J]. 粉末冶金材料科学与工程, 2015, 20 (5): 675-682.
- [6] FELICELLI S D, HEINRICH J C, POIRIER D R. Simulation of freckles during vertical solidification of binary alloys [J]. Metallurgical Transactions B, 1991, 22 (6): 847-859.
- [7] FRUEH C, POIRIER D R, FELICELLI S D. Predicting freckle-defects in directionally solidified Pb-Sn alloys [J]. Materials Science & Engineering A, 2002, 328 (1): 245-255.
- [8] HAN Z. Numerical simulation on channel segregation in vertically unidirectional solidification process [J]. Acta Metallurgica Sinica, 2003, 39 (2): 315-319.
- [9] 曹海峰, 沈厚发, 柳百成. 镍基高温合金定向凝固斑点偏析的数值模拟研究 [J]. 稀有金属材料与工程, 2006, 35 (12): 1849-1853.
- [10] BENNON W D, INCROPERA F P. A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems-I. Model formulation [J]. International Journal of Heat & Mass Transfer, 1987, 30 (10): 2161-2170.
- [11] SAMPLE A K, HELLAWELL A. The mechanisms of formation and prevention of channel segregation during alloy solidification [J]. Metallurgical Transactions A, 1984, 15 (12): 2163-2173.
- [12] SCHNEIDER M C, GU J P, BECKERMANN C, et al. Modeling of micro-and macro-segregation and freckle formation in single-crystal nickel-base superalloy directional solidification [J]. Metallurgical & Materials Transactions A, 1997, 28 (7): 1517-1531.
- [13] FELICELLI S D, POIRIER D R, HEINRICH J C. Modeling freckle formation in three dimensions during solidification of multicomponent alloys [J]. Metallurgical & Materials Transactions B, 1998, 29 (4): 847-855.

---

## Numerical Simulation of Freckle Formation During Directional Solidification of Pb-Sn Alloy

CUI Jia-jun, LI Bao-kuan, NIU Ran, WANG Zhuo  
( School of Metallurgy, Northeastern University, Shenyang 110819, Liaoning, China )

**Abstract:**

In order to investigate the formation of freckle during vertical directional solidification of binary alloys, a mathematical model for the coupled solution of velocity field, solute field and temperature field was established under directional solidification. This model was used to simulate the directional solidification process of Pb-10wt%Sn alloy in a cylindrical ingot. The simulation results show that the flow causing freckle formation originates from the liquid region rather than the mushy zone. The solute-rich fluid continuously converges toward the channels of mushy zone and continues to replenish the flow in the channel from the liquid region through the mushy zone. Some elongated solute enrichment channels are formed inside the ingot after solidification, and these top freckles are located near the arc with a radius of  $R/2$ . This result was also verified by the freckle formation in actual ingots.

**Key words:**

Pb-Sn alloy; directional solidification; freckle formation; numerical simulation