

[文章编号] 1004- 0609(2002)01- 0126- 05

纤维增强二元铝合金凝固偏析的数值模拟^①

刘 政, 刘小梅, 朱应禄, 陈一胜, 刘维平
(南方冶金学院 材料科学与工程系, 赣州 341000)

[摘 要] 根据合金凝固过程中的守恒定律和传输原理, 建立了纤维增强二元铝合金的凝固模型。利用所建立的模型, 对 $Al_2O_3/AlCu$ 合金复合材料凝固时溶质传输和分布进行了数值模拟, 研究了复合材料凝固时溶质偏析对纤维/基体界面的影响。模拟结果与实验结果吻合较好。

[关键词] 复合材料; 铝合金; 凝固; 偏析; 数值模拟

[中图分类号] TG 111.4

[文献标识码] A

纤维增强金属基复合材料的制备工艺有多种, 其中液态浸渗法具有潜在的简易性和经济性, 被认为是最成功的方法^[1]。这种方法包括液态合金充填纤维预制件以及在预制件的空隙中凝固。但是凝固时, 由于金属基体和普通合金一样, 受选择结晶以及结晶速度大于溶质扩散速度的影响, 不可避免地要在基体中产生偏析, 并将影响到最终的凝固组织。这种现象是合金凝固过程中溶质传输与再分布的结果, 与合金凝固过程中的物质迁移过程密切相关。国内外都有学者^[2~8]研究了铝基复合材料的凝固过程和凝固组织, 得出一些有意义的结果。利用数值模拟技术研究金属基复合材料的凝固过程也见报道。Lacoste 等人对纯金属浸渗纤维预制件作了数值模拟计算, 建立了浸渗过程的热量和质量传输模型^[9]。Hanumanth 等人^[10]通过对碳化硅增强 A356 铝合金凝固过程的研究, 建立了一维模型, 并作了数值计算。我国学者研究了纤维增强金属基复合材料液相浸渗过程的阻力及充填形式^[11]。在已有的金属基复合材料凝固过程数值模拟研究中, 大多是把重点放在液态金属对纤维预制件的充型上, 而对充型后的凝固过程研究甚少。基体合金的凝固虽然要受到增强体的影响, 但是仍由质量传递、能量传递和动量传递综合控制。基于合金凝固时的守恒定律, 作者研究了纤维增强二元铝合金的凝固问题, 建立相应的数学模型, 分析复合材料凝固时溶质传输及分布现象, 并用计算机进行数值模拟。

1 几点假设

合金凝固过程从液相到固液相共存, 直到全部转变为固相, 其量的变化可由固相体积分数 φ_s 来体现。将处于任意凝固阶段的纤维增强二元铝合金视为一种连续介质, 在建立凝固数学模型时, 假设空间所取控制体积元既足够大, 即任意时刻某种性质可代替该体积元的局部平均值, 又足够小, 即可作为微元体处理。所取控制体积元包含若干根纤维, 体积分数为 φ_f , 见图 1。还假设:

- 1) 局部凝固界面上服从热力学平衡条件;
- 2) 凝固过程受恒定压力作用;
- 3) 凝固时微元体内充满液体且成分均匀;
- 4) 忽略溶质固相扩散及液态合金与固态合金之间的密度差, 忽略凝固收缩;
- 5) 纤维尺寸足够小使微元体内温度均匀;
- 6) 在所研究的系统中, 基体不会在纤维上形核;
- 7) 液态合金在微元体中的流动满足 Darcy 定律。

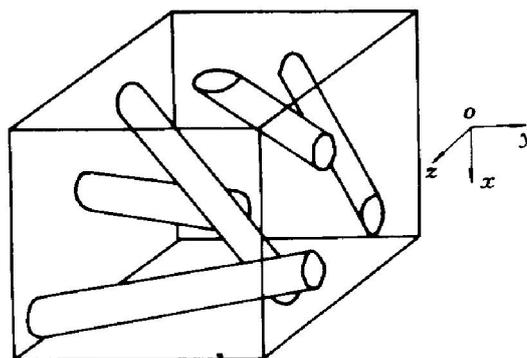


图 1 控制体积单元

Fig. 1 Volume unit controlled

① [基金项目] 教育部科学技术研究重点项目(00191)
[作者简介] 刘 政(1959-), 男, 教授, 硕士。

[收稿日期] 2001- 02- 19; [修订日期] 2001- 07- 02

2 数学模型与计算方法

复合材料凝固时传递过程中的溶质质量守恒方程由下式表示:

$$\Delta C_i = \Delta C_D + \Delta C_{LF} + \Delta C_S \quad (1)$$

式中 ΔC_i —微元体平均成分变化引起的溶质增量; ΔC_D —溶质扩散引起的溶质增量; ΔC_{LF} —液相流动造成的溶质增量; ΔC_S —液相凝固导致的溶质增量。

基于凝固定义,对于纤维体积分数为 φ_f 的复合材料来说,凝固区域的溶质质量守恒微分方程为

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \nabla(\varphi_L D_L \nabla C_L) - \nabla[(C_L \varphi_L) u_L] + C_L(1 - K_0) \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} \quad (2)$$

式中 C_i —局部平均成分, %; C_L —局部液相成分, %; D_L —液相扩散系数, m^2/s ; K_0 —平衡分配系数; u_L —液相局部流动速度, m/s ; φ_L , φ_s —液相、固相体积分数。

为求解液相成分,根据合金凝固时的能量守恒和流体动量守恒,还可导出下列微分方程:

$$\begin{aligned} & (\varphi_m c_{p,m} \rho_m + \varphi_f c_{p,f} \rho_f) \frac{\partial T}{\partial t} + \rho_m c_{p,m} \cdot \\ & \nabla(\varphi_L u_L T) = (\varphi_m k_m + \varphi_f k_f) \nabla^2 T + \\ & \rho_m \varphi_m h_m \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} \quad (3) \\ & \rho_m \frac{\partial(\varphi_L u_L)}{\partial t} + \rho_m \nabla[(f_L u_L) u_L] = \\ & \mu \nabla^2(\varphi_L u_L) - p \nabla \varphi_L + \rho_m \varphi_L g - \left(\frac{\mu \varphi_L^2}{K}\right) u_L \quad (4) \end{aligned}$$

式中 $c_{p,m}$, $c_{p,f}$ —基体、纤维等压热容, kJ/mol ; ρ_m , ρ_f —基体、纤维密度, kg/m^3 ; k_m , k_f —基体、纤维导热系数, $W/m \cdot K$; φ_m —基体体积分数, $\varphi_m = \varphi_L + \varphi_S$, $\varphi_m + \varphi_f = 1$; h_m —基体凝固潜热, kJ/mol ; p —压力; N/m^2 ; μ —粘度系数, $N \cdot s/m^2$; K —渗透率, m^2 ; g —重力加速度。

用液态浸渗法制备纤维增强铝合金时,液态合金在纤维预制件中的流动可视为液体在多孔介质中的流动,基于假设7),其表观流动速度可表示为

$$v_0 = -\frac{K}{\mu}(\nabla p - \rho_m g) \quad (5)$$

考虑到纤维预制件的体积分数及大部分纤维在预制件中呈现二维无序分布,液态合金浸渗预制件时,由于液态合金与纤维之间的热交换,导致部分固相形成,渗透率 K 可表示为^[12]

$$K = \frac{2\sqrt{2}r_{sf}^2}{9\varphi_{sf}} \left(1 - \sqrt{\frac{4\varphi_{sf}}{\pi}}\right)^{\frac{5}{2}} \quad (6)$$

式中 r_{sf} —固相材料(纤维和已凝固基体)的半径, m ; φ_{sf} —固相材料的体积分, $\varphi_{sf} = \varphi_f + \varphi_s$ 。

在微元体中,液态合金相对于固相(纤维、枝晶等)的局部流动速度 u_L 与表观流动速度 v_0 有下列关系^[13]:

$$u_L = \frac{v_0}{(1 - \varphi_f) \varphi_L} \quad (7)$$

通过将式(2), (3), (4)和(7)联立,可求得固相分数 φ_S 、液相成分 C_{iL} 、温度 T 及液相流速 u_L 。

由所建立的复合材料凝固过程的数学模型来看,各方程之间的关系呈非线性,使数值模拟变得复杂。为减少复杂程度,假设制备复合材料时,在恒定压力作用下,液态合金沿纤维预制件的轴线方向(x 方向)浸渗预制件;浸渗时,预制件不变形(即 φ_f 为常数)且纤维分布均匀。由于浸渗压力足够大且压力梯度相对较高,可忽略重力场对复合材料凝固过程的影响。那么,式(2)~(5)和(7)可简化为一维形式

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_i}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x}(\varphi_L D_L \frac{\partial C_L}{\partial x}) - \frac{\partial}{\partial x}[(C_L \varphi_L) u_{Lx}] + \\ & C_L(1 - K_0) \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} \quad (8) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & (\varphi_m \rho_m c_{p,m} + \varphi_f \rho_f c_{p,f}) \frac{\partial T}{\partial t} + \rho_m c_{p,m} \cdot \\ & \frac{\partial}{\partial x}(\varphi_L u_{Lx} T) = (\varphi_m k_m + \varphi_f k_f) \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \\ & \rho_m \varphi_m h_m \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} \quad (9) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \rho_m \frac{\partial(\varphi_L u_{Lx})}{\partial t} + \rho_m \frac{\partial}{\partial x}[(\varphi_L u_{Lx}) u_{Lx}] = \\ & \mu \frac{\partial^2(\varphi_L u_{Lx})}{\partial x^2} - p_x \frac{\partial \varphi_L}{\partial x} - \left(\frac{\mu \varphi_L^2}{K}\right) u_{Lx} \quad (10) \end{aligned}$$

$$v_{0x} = -\frac{K}{\mu} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (11)$$

$$u_{Lx} = \frac{v_{0x}}{(1 - \varphi_f) \varphi_L} = -\frac{K}{\mu(1 - \varphi_f) \varphi_L} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (12)$$

为了有效地处理复合材料凝固时各传递过程之间的交互作用,采用显式差分格式,对建立的复合材料的凝固温度、凝固进程、液相浓度和流速的守恒方程进行数值模拟。

3 计算结果与讨论

模拟计算对象为 $\varphi_f = 0.2$ 的 $Al_2O_3/Al-4\% Cu$ 复合材料。尺寸为 $d52 mm \times 30 mm$,铸型壁厚为 $40 mm$,材料为 45 钢。复合材料铸锭、铸型和底座的初始温度分别为 $760^\circ C$, $400^\circ C$ 和 $100^\circ C$ 。合金

液开始凝固时处于静态。应用建立的复合材料凝固模型，对该凝固系统的温度分布、凝固进程和液相溶质及分布等进行模拟。凝固系统的所有物性参数均引自有关文献[14, 15]。

为最终模拟基体凝固之后其成分分布以及对纤维/基体界面的影响，选取微元体内一根纤维做模拟对象，在模拟的空间范围内，纤维体积分数 $\varphi_f=0.2$ ，坐标系统的选取与合金液浸渗方向一致，见图2。假定模拟空间范围的尺寸为2个单位长度，由于系统的对称性及各向同性，各模拟量只须计算一半。

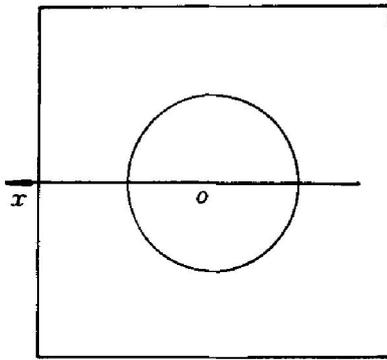


图2 计算微元体

Fig. 2 Calculating micro-unit

图3所示是计算得到的复合材料凝固过程中的温度和固相分数分布。由图3可见：在凝固初期，液态合金充满了纤维预制件，由于纤维足够小，液态合金与纤维热交换后，两者具有相同的温度，复合材料内部温度分布较平坦，见图3(a)；到凝固后期，由于已有一部分合金凝固，合金凝固所释放的潜热通过传导或对流扩散到固相或液相中，使得复合材料内部的温度分布不均匀，见图3(b)。在图3中，同时还绘出了该凝固时刻的固相分数分布(即凝固过程，虚线所示)。复合材料中大部分基体已凝固 ($\varphi_f=0.2$ ，则 $\varphi_s=0.8$ ，即基体已完全凝固)，只有在纤维附近尚存少量液相，而且固相分数在纤维附近出现陡降。这可能是由于复合材料的凝固为非平衡过程，选择结晶导致尚存液相的溶质浓度增高，使得原先固溶体型合金转变为亚共晶型甚至共晶型合金。由Al-Cu平衡相图可算得在此温度(580~600℃)下，亚共晶型Al-Cu合金比Al-4%Cu合金有更低的固相分数。因此，在Al₂O₃/Al-4%Cu复合材料的凝固过程中，最终有部分剩余液相将发生共晶转变，形成富铜相。

图4所示是复合材料凝固后，纤维附近基体中溶质的分布。由图4可见，在纤维/基体界面上有溶质富集，与图3(b)所示结果对应。凝固初期，由于

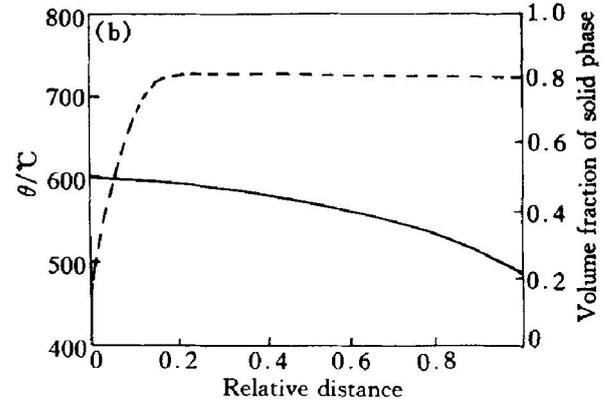
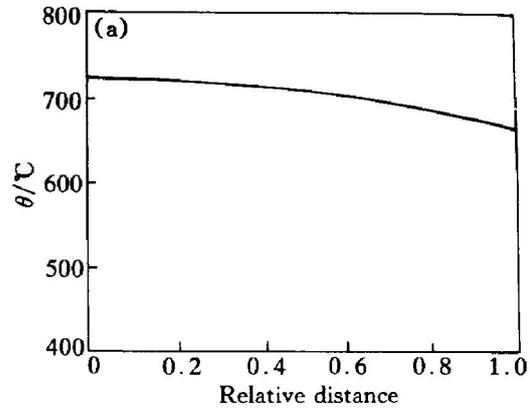


图3 复合材料凝固过程中的温度分布

Fig. 3 Temperature distribution in composite during solidification

(a) $-t=19\text{ s}$; (b) $-t=126\text{ s}$

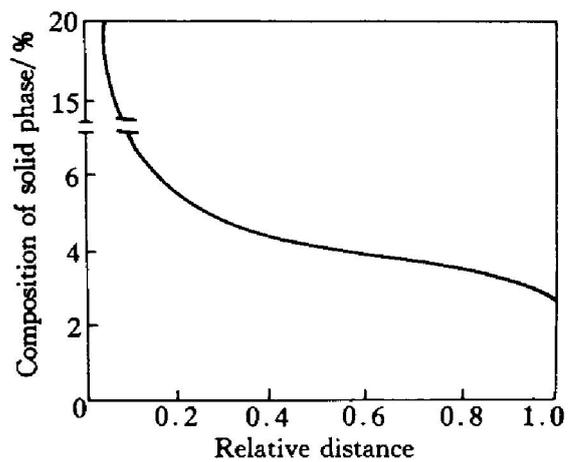


图4 复合材料凝固后基体成分分布

Fig. 4 Composition distribution in matrix after composite solidification

液态合金的流动，加强了固相/液相界面的传质，已结晶的固相中溶质含量偏低；到凝固后期，固相增多，固液两相区中合金的表观粘性系数和表观屈服应力随固相分数增加而增大，液相流动困难。已有研究^[16]表明，在Al-4.5%Cu合金中，当固相分数增至0.6~0.73时，两相区中的液体就停止流

动。

因此, 在凝固结束之前, 复合材料中的固相分数 ($\varphi_s + \varphi_f$) 大于某一值时, 剩余液相则不能流动, 即 $u_{Lx} = 0$ 。那么式(8)可写成

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_L \frac{\partial}{\partial x} \left(\varphi_L \frac{\partial C_L}{\partial x} \right) + C_L (1 - K_0) \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} \quad (13)$$

式(13)可看成是 Fick 扩散定律在复合材料凝固末期的一种特殊表达形式。这样, 在复合材料凝固的最后阶段, 固相/液相界面的溶质传递过程主要靠扩散进行, 而且在凝固结束之前, 剩余液相中的溶质浓度可达 C_0/K_0 (C_0 为合金原始成分)。凝固结束时, 富含溶质的剩余液相将在纤维/基体界面上或在纤维附近的枝晶间转变为固相。

利用扫描电镜观察了挤压铸造 $Al_2O_3/Al-4\%Cu$ 复合材料试样。图 5 所示是复合材料的凝固组织。由图可见, 一些第二相组织分布在纤维/基体界面上和纤维周围的枝晶间, 造成溶质富集, 与模拟结果是一致的。由于界面上比基体中存在更高的化学位, 在复合材料凝固过程中, 界面处于固/液两相的时间亦较长。从热力学和动力学角度来看, 都可能在界面上发生一定的化学反应, 形成界面层。图 6 是复合材料的界面形貌。在 $Al_2O_3/Al-4\%Cu$ 复合材料中, 界面上发生的反应可能是纤维中二氧化硅的还原^[17] 和铝铜尖晶石的形成^[4], 这些过程均产生在凝固后期。利用 X-650 扫描电子显微镜对复合材料的界面做了能谱分析, 结果表明界面上铜和硅的含量分别达到 28% 和 12%, 这与界面形成了富铜相和发生了二氧化硅的还原是对应

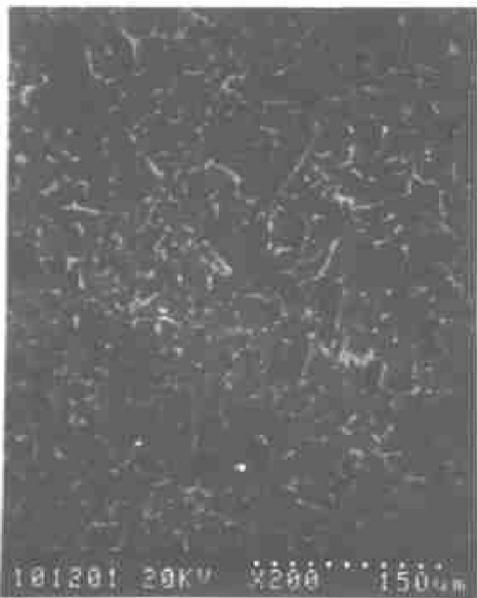


图 5 复合材料的凝固组织

Fig. 5 Solidifying structures of composite

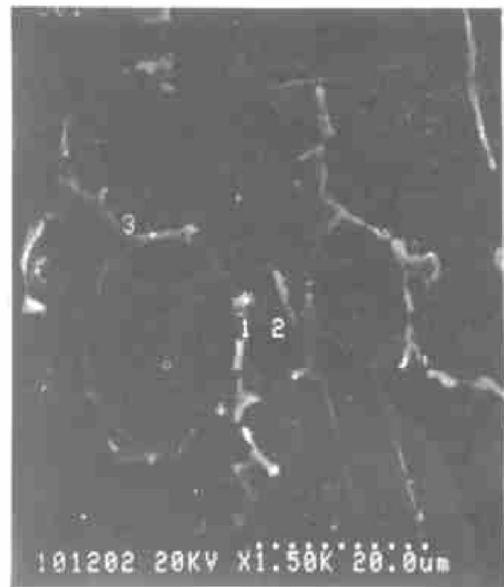


图 6 复合材料中的纤维/基体界面

Fig. 6 Interface at fiber/matrix in composite

的。由热力学来看, 系统内部自发进行的化学反应必然伴随着整个系统的能量降低。在 $Al_2O_3/Al-Cu$ 复合材料中, 界面反应的发生, 有利于降低固/液界面能, 促进纤维与基体结合。

4 结论

1) 根据合金凝固的质量守恒、能量守恒和动量守恒原理, 纤维增强二元铝合金的凝固过程和凝固时溶质传输现象可用一组微分方程来描述。本文建立的模型较真实地反映了这些过程和现象, 并能进行数值模拟。

2) 对 $Al_2O_3/Al-4\%Cu$ 复合材料进行了数值模拟, 计算结果和实验结果较一致, 证明建立的模型和使用的计算方法是合理的。

3) 在 $Al_2O_3/Al-4\%Cu$ 复合材料的凝固末期, 选择结晶使得部分剩余液相由固溶型合金转变为亚共晶型合金, 最终导致溶质在界面上富集, 形成了合金元素的偏析。

[REFERENCES]

- [1] Mortensen A. Solidification processing of metal-matrix composites [J]. J of Metals, 1998(2): 12- 19.
- [2] Clyne T W. The squeeze infiltration process for fabrication of metal-matrix composites [J]. Metall Trans, 1987, 18A: 1519- 1533.
- [3] Mortensen A. Columnar dendritic solidification in a metal-matrix composite [J]. Metall Trans, 1988, 19A: 709

- 721.
- [4] Fishkis M. Interface and fracture in saffil/AlMg-Cu metalmatrix composites [J]. *J Mater Sci*, 1991, 26: 251- 2661.
- [5] Michaud V, Mortensen A. Infiltration of fiber preforms by binary alloy: Part II. Further theory and experiments [J]. *Metall Trans*, 1992, 23A: 2263- 2280.
- [6] 崔岩, 耿林, 姚忠凯. SiC_p/6061Al 复合材料的界面优化与控制 [J]. *中国有色金属学报*, 1997, 7(4): 159- 162.
- CUI Yan, GENG Lin, YAO Zhong-kai. Interface optimization and control in SiC_p/6061 Al composites [J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 1997, 7(4): 159- 162.
- [7] 储双杰, 吴人杰, 杨春生. 定向凝固 Al₂O₃/Al-4.5Cu 复合材料显微组织与合金元素的分布 [J]. *金属学报*, 1998, 34(4): 437- 442.
- CHU Shuang-jie, WU Ren-jie, YANG Chun-sheng. Microstructure and alloy element distribution of directionally solidified Al₂O₃/Al-4.5Cu metal matrix composites [J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 1998, 34(4): 437- 442.
- [8] 隋贤栋, 罗承萍, 欧阳柳章. 铸造 SiC_p/AlSi 复合材料中的“界面 Si”行为 [J]. *中国有色金属学报*, 1999, 9(1): 20- 24.
- SUI Xian-dong, LUO Cheng-ping, OUYANG Liuzhang. Interfacial Si behavior in cast SiC_p/AlSi composites [J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 1999, 9(1): 20- 24.
- [9] Lacoste E, Aboufatah M, Danis M, et al. Numerical simulation of the infiltration of fibrous preforms by a pure metal [J]. *Metall Trans*, 1993, 24A: 2667- 2678.
- [10] Hanumanth G S, Iron G A. Solidification of particle reinforced metalmatrix composites [J]. *Metall Trans*, 1996, 27B: 663- 671.
- [11] 王浩伟, 张国定. 纤维增强金属基复合材料液相浸渗充填过程 [J]. *复合材料学报*, 1995, 12(1): 38- 42.
- WANG Haowei, ZHANG Guoding. The liquid infiltration and filling process for fiber reinforced metal matrix composites [J]. *Acta Material Compositae Sinica*, 1995, 12(1): 38- 42.
- [12] Mortensen A. Infiltration of fibrous preforms by a pure metal: Part I Theory [J]. *Metall Trans*, 1989, 20A: 2535- 2547.
- [13] Mortensen A, Michaud V. Infiltration of fiber preforms by binary alloy: Part I Theory [J]. *Metall Trans*, 1990, 21A: 2059- 2072.
- [14] Clyne T W, Withers P J. *An Introduction to Metal Matrix Composites* [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1993.
- [15] 杨全, 张真. 金属凝固与铸造过程数值模拟 [M]. 杭州: 浙江大学出版社, 1996.
- YANG Quan, ZHANG Zhen. *Metal Solidification and Numerical Simulation during Casting Process* [M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 1996.
- [16] Kubo K. Computer simulation of equiaxial dendrite solidification of aluminum alloy [J]. *J Jpn Inst Metal*, 1990, 54(7): 816- 825.
- [17] 刘政, 周彼德, 彭德林, 等. 氧化铝短纤维增强铝合金复合材料界面的研究 [J]. *复合材料学报*, 1991, 8(4): 1- 6.
- LIU Zheng, ZHOU Bide, PENG Delin, et al. A study of the interface of short alumina fiber reinforced aluminium alloy composites [J]. *Acta Material Compositae Sinica*, 1991, 8(4): 1- 6.

Numerical simulation on segregation of fiber reinforced binary aluminum alloy during solidification

LIU Zheng, LIU Xiao-mei, ZHU Ying-lu, CHEN Yirsheng, LIU Weiping
(Department of Materials Science and Engineering, Southern Institute of Metallurgy,
Ganzhou 341000, China)

[Abstract] The solidification model of fiber reinforced binary aluminum alloy was established according to the conservation law and the transfer principle of alloy solidification. The numerical simulation of the solute transfer and the solute distribution was carried out on Al₂O₃/AlCu composite by the established model. The effect of solute segregation during solidification of the composite on the fiber/matrix interface was studied. The calculated values coincide with the experimental results on the whole.

[Key words] composite; aluminum alloy; solidification; segregation; numerical simulation

(编辑 朱忠国)