

# MODELIZACIÓN NUMÉRICA DE LA INTERACCIÓN DE PARTÍCULAS ESFÉRICAS DURANTE LA SOLIDIFICACIÓN DE MATERIALES: CASO DE UNA INTERFASE CÓNCAVA

Eliana M. Agaliotis, Mario R. Rosenberger, Alicia E. Ares, Carlos E. Schvezov

*Prog. de Materiales, Modelización y Metrología, FCEQyN, Universidad Nacional de Misiones, y CONICET. Félix de Azara 1552, (3300) Posadas, Misiones, Argentina, [eliana@fceqyn.unam.edu.ar](mailto:eliana@fceqyn.unam.edu.ar), [schvezov@fceqyn.unam.edu.ar](mailto:schvezov@fceqyn.unam.edu.ar)*

**Palabras clave:** Elementos Finitos, Solidificación, Materiales compuestos, Interacción Sólido-Fluido.

**Resumen.** El movimiento de una interfase de solidificación hacia una partícula esférica inmersa en el material fundido genera interacciones entre la interfase y la partícula, lo que afecta la distribución de las mismas obteniéndose diferentes propiedades mecánicas y físico-químicas. Se modeló y simuló la interacción entre una interfase de solidificación y una partícula esférica, inmersa en el material fundido, teniendo en cuenta que este fenómeno está regido por un equilibrio dinámico entre fuerzas de arrastre y repulsión que se manifiestan sobre la partícula. El modelo incluye dos fuerzas, una de arrastre y otra de repulsión, calculadas por separado luego combinadas para obtener el valor de equilibrio. Utilizando dinámica de fluidos computacional se calculó la fuerza de arrastre sobre la partícula en función de la velocidad de solidificación, el radio de la partícula y la separación partícula-interfase. La fuerza de repulsión se calculó utilizando la ecuación de Lifshitz van der Waals integrando numéricamente según la forma y separación de la interfase. Se compararon las fuerzas de arrastre obtenidas con una interfase plana y con una interfase cóncava, ésta última fue calculada a partir de simulaciones del campo térmico. Los resultados muestran que una interfase cóncava genera mayores fuerzas de arrastre que una interfase plana a una misma separación de interfase. Esto hace que la velocidad crítica sea menor que la correspondiente para una interfase plana y un mismo radio de partícula.

## 1 INTRODUCCIÓN

Los estudios de solidificación de materiales conteniendo partículas muestran que existe una interacción entre la partícula y la interfase sólido-líquida que puede repeler o atrapar a la partícula afectando las propiedades finales del material que las contiene. Este fenómeno fue analizado por diversos autores utilizando modelos matemáticos y experimentales (Pikunov, 1957; Uhlmann et al., 1964; Bolling and Cissé, 1971; Chernov and Temkin, 1977, Corte, 1962)) en los cuales se observa que existe una velocidad crítica de movimiento de la interfase por encima de la cual se produce el atrapado de la partícula, ésta velocidad crítica disminuye con el aumento del radio de la partícula. Ya sea que se trate de repulsión o atrapado hay más de un mecanismo o interacción que puede crear una fuerza de repulsión entre la partícula y el sólido que conduzcan a la repulsión. En el caso de un estado estacionario de repulsión, existen dos fuerzas principales; la de arrastre ( $F_a$ ) y la de repulsión ( $F_r$ ) que se encuentran en equilibrio. El fenómeno depende de las propiedades, la naturaleza y la morfología de la partícula, el fundido, el sólido y los campos externos (Kim and Rohatgi, 1998; Catalina et al., 2000; Hadji, 2002; Garvin et al., 2002). Así, cuando la conductividad térmica de la partícula es diferente a la del medio, la forma de la interfase se altera en las proximidades a la partícula (Agaliotis et al. 2008; Rosenberger et al. 2005; Schvezov, 1999). Los modelos son empleados para predecir la velocidad crítica, sin embargo hay muchos aspectos, como los efectos de una interfase no plana, que no están completamente estudiados.

Modelos matemáticos para interfases planas y no planas fueron desarrollados y son presentados en este trabajo. Los resultados incluyen el efecto de la conductividad térmica en la configuración geométrica del sistema partícula-interfase que modifican la velocidad crítica y las condiciones de equilibrio responsables de la repulsión estacionaria de las partículas. Se aborda particularmente el caso de una partícula conductora y una interfase cóncava.

## 2 MÉTODOS

### 2.1 Descripción del modelo

El sistema a estudiar está constituido por una partícula esférica de radio  $R$  inmersa en la matriz de un fluido que está solidificando, como se muestra en la Fig. 1.

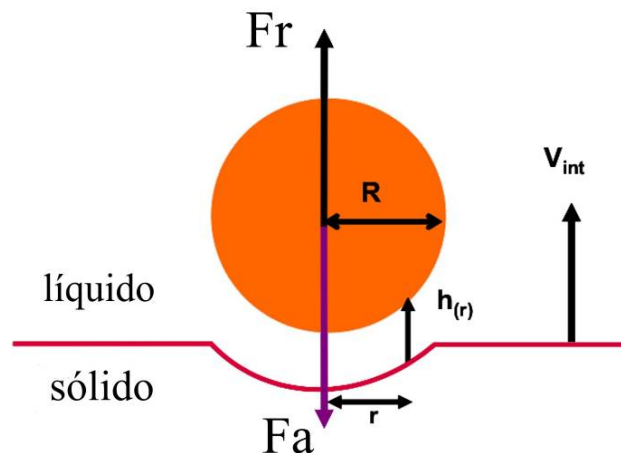


Figura 1: Esquema del sistema a modelar.

A pequeñas distancias los campos más afectados por la presencia de la partícula son el campo de flujo de fluidos y el campo térmico. En el ámbito de influencia y predominio de la fuerza de repulsión, la partícula tenderá a retirarse de la interfase y en algún caso a moverse con ella, como resultado de eso se establece una circulación de fluido que tiende a acercar la partícula hacia la interfase. Esta circulación introduce el efecto de arrastre sobre la partícula. El equilibrio entre la fuerza de arrastre y la de repulsión en la solidificación influye en el movimiento de la partícula que se acerca o aleja de la interfase. Si la distancia interfase partícula es grande el proceso es independiente de la presencia de la interfase. Las fuerzas de repulsión consideradas son del tipo de Casimir-Lifshitz-Van der Waal y las de arrastre son debidas a la viscosidad del fluido y calculadas con las ecuaciones de Navier-Stokes (Schvezov, 1999). La fuerza de gravedad se considera despreciable frente a estas fuerzas.

El campo térmico está determinado por los valores de las conductividades térmicas de la partícula, el líquido y el sólido, modificando la forma de la interfase en las cercanías a la partícula.

Los campos térmicos y de fluidos fueron desacoplados. Primero se calculó, mediante la simulación del campo térmico, la forma de la interfase a diferentes separaciones partícula-interfase, con un rango de separaciones comprendido entre un valor igual a un diámetro de la partícula y  $1 \times 10^{-8}$  m, como se muestra en la Fig. 2, los tamaños de partículas modelados fueron de 50, 10 y 1 micrón. Luego, a partir de cada una de las interfases calculadas se construyó un modelo para calcular el flujo de fluidos alrededor de la partícula, en el rango de velocidades comprendido entre  $1 \times 10^{-11}$  m/s y  $8 \times 10^{-4}$  m/s, el cual abarca las velocidades de interfase típicos en la solidificación de metales y donde se podría encontrar una partícula en estado estacionario de repulsión. La fuerza de arrastre sobre la partícula fue calculada y representada en función de la velocidad. En tercer lugar, se calculó a partir de cada una de las interfases, obtenidas del modelo térmico, la fuerza de repulsión según el modelo de Casimir-Lifshitz-Van der Waals.

Se calcula el punto de equilibrio igualando las fuerzas  $F_a$  y  $F_r$  obtenidas para cada una de las interfases. Se obtiene entonces una relación entre la separación partícula-interfase y la velocidad de interfase en la situación de estado estacionario de repulsión.

## **2.2 Modelo térmico**

El modelo térmico es desacoplado del modelo de flujo de fluidos, esta simplificación se realiza considerando que el flujo de calor debido a la conducción es mucho mayor que el debido a la convección. Se considera solamente la transferencia de calor por conducción, unidireccional en el sentido de avance de la interfase y las propiedades independientes de la temperatura, donde la partícula es mejor conductora del calor que la matriz. Las demás fronteras se encuentran aisladas.

La simulación es realizada en un modelo de simetría axial dependiente del tiempo mediante elementos finitos. La resolución del problema incluye las ecuaciones de conservación de la masa, momento y energía en forma dinámica.

El dominio fue discretizado utilizando una malla estática de 50000 elementos cuadriláteros con funciones de interpolación de primer orden en la temperatura. Se refinó el modelo en las cercanías de la partícula para un mejor detalle de la curvatura de la interfase, como se puede ver en la Fig. 2. Sucesivos decrementos de los valores de pasos del tiempo fueron utilizados para obtener una buena delineación de la forma y posición de la interfase, especialmente en las situaciones donde ésta se posiciona a distancias menores a  $10^{-7}$ m de la partícula, reduciéndose el paso del tiempo hasta valores de  $5 \times 10^{-6}$  segundos. La forma y posición de la

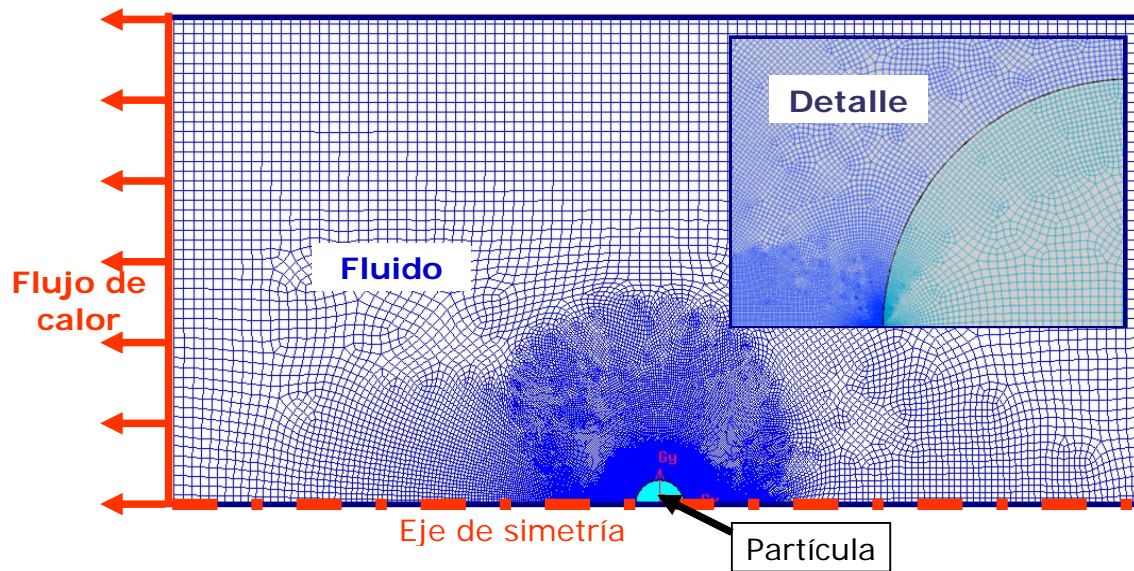


Figura 2: Malla empleada en el modelo térmico.

interfase se determinó siguiendo la isoterma de solidificación. 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 el método implícito de Crank-Nicholson con un paso de tiempo variable ajustado mediante Adams-Bashforth (Fidap 8, 1998; Chapra y Canale, 2002; Nieves y Dominguez, 2002).

### 2.3 Modelo de flujo de fluidos

Las fuerzas de arrastre son calculadas numéricamente a partir del campo de velocidades del fluido alrededor de la partícula, el cual es obtenido resolviendo las ecuaciones de Navier Stokes utilizando el método de elementos finitos. El objetivo del modelo de flujo de fluidos es calcular la fuerza de arrastre alrededor de la partícula que la empuja junto con la interfase. El modelo se simula en estado estacionario y se utilizan las ecuaciones de balance de masa y momento para el análisis.

En la interfase se impuso una velocidad de fluido constante paralela al eje de simetría, dejando sin imposición los demás contornos de la fase fluida. Sobre la superficie de la esfera

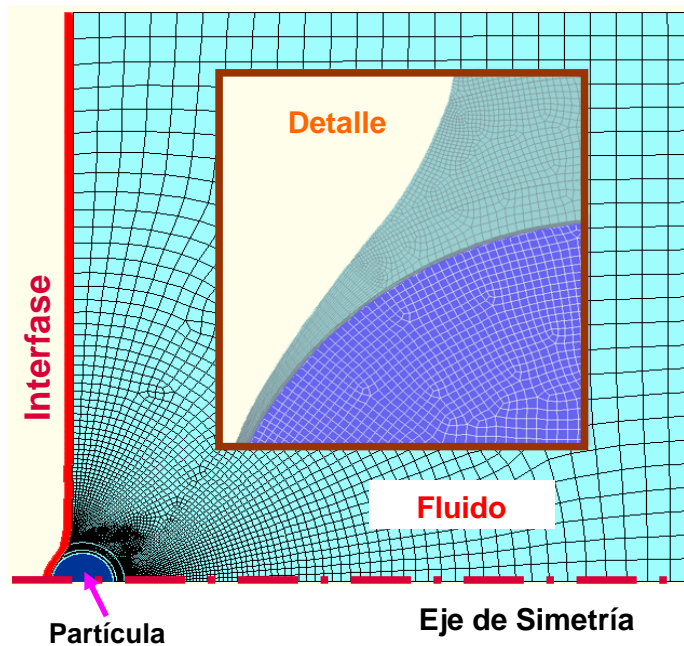


Figura 3: Malla del modelo de simetría axial. Detalle: ampliación de la región de la partícula

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 del orden de  $10^{-6}$  y aún menor.

En vista de la simetría se emplea un modelo de simetría axial. En la discretización del dominio se emplearon mallas no estructuradas estáticas, una por cada posición de la interfase, utilizando 30000 a 50000 elementos cuadriláteros, con funciones de interpolación de segundo orden para la velocidad y de primer orden para la presión. En la resolución del sistema de ecuaciones se utilizó el método de Picard.

Detalles de los cálculos y resultados para interfaces planas fueron presentados con anterioridad (Agaliotis et al., 2008). Para interfaces planas se ha mostrado que el cálculo de la fuerza de arrastre es similar a la calculada con la ecuación de Stokes Modificada para pequeñas distancias entre la partícula y la interfase.

#### 2.4 Modelo de fuerzas de repulsión

La fuerza de repulsión o pushing es la fuerza de Casimir-Lifshitz-Van der Waals que es calculada para una partícula esférica como:

$$F_R = 2\pi B_3 \int_0^R \frac{r dr}{h^3(r)} \quad (1)$$

Donde  $r$  es la distancia desde el eje vertical de la partícula,  $h(r)$  es la separación entre la interfase y la partícula como se muestra en la Fig 1;  $B_3$  es la constante de Casimir-Lifshitz-

Van der Waals que es tomada como  $B_3=1 \times 10^{-21} \text{J}$ . Ambas fuerzas; la de arrastre y la de Casimir-Lifshitz-Van der Waals, son desacopladas y calculadas separadamente para cada posición de la partícula con respecto a la interfase de solidificación que se está moviendo. La posición de equilibrio para el estado de repulsión es calculada igualando las relaciones fuerza de repulsión-h y fuerza de atracción-h donde ambas son iguales corresponde a la separación de estado estacionario de repulsión  $h_{eq}$ .

La integración de la ecuación (1) se realiza numéricamente. Dos técnicas de integración numérica fueron probadas, las técnicas del trapecio y del trapecio adaptativo. Los resultados son iguales con una dispersión de 5%. En vista de esto, la técnica del trapecio es elegida.

### 3 RESULTADOS Y DICUSIÓN

#### 3.1 Modelo térmico

El dominio utilizado en los cálculos consiste en una partícula esférica con una conductividad térmica  $k_p$ , inmersa en un fluido de conductividad térmica  $k_m$ . Para estudiar la influencia del tamaño de la partícula se consideraron tres radios diferentes: 1, 10 y 50 micrones. Para cada tamaño se construyó una malla diferente. Para obtener una interfase cóncava la relación entre conductividades térmicas utilizada fue  $k_p/k_m$  igual a 10 (Rosenberger et al., 2005), representativa de un sistema de matriz metálico como, por ejemplo el sistema plomo-cobre. Se emplea la ecuación de balance de calor para el análisis.

Los resultados de la simulación se muestran en la Fig. 4, donde se superpusieron diferentes estadios de la interfase a medida que se va acercado a la partícula. Se puede ver que a distancias mayores que  $2R$  la interfase es plana y a medida que se aproxima a la partícula la interfase se vuelve gradualmente cóncava.

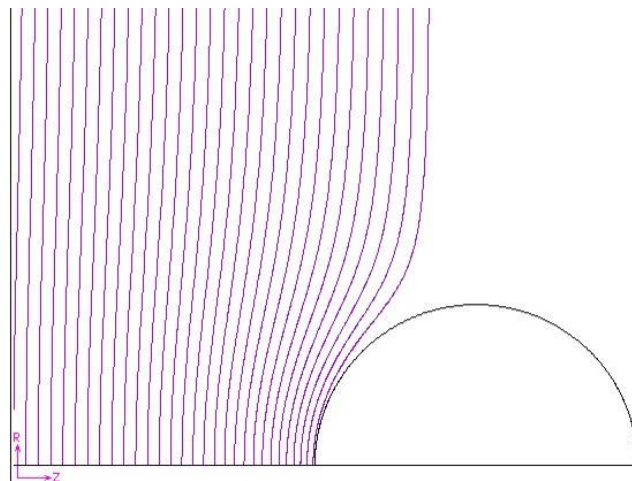


Figura 4. Forma de la interfase según diferentes separaciones partícula-interfase

### 3.2 Modelo de flujo de fluidos. Las fuerzas de arrastre

El modelo de flujo de fluidos se simuló adoptando para la matriz las propiedades de un metal típico a la temperatura de fusión. En fase líquida la viscosidad es de  $1,5 \times 10^{-3}$  Pa.s independiente de la temperatura. La fase sólida se simuló como un fluido de muy alta viscosidad ( $\mu$ ) igual a  $10^6$  veces la viscosidad de la fase líquida. Se adoptó para la partícula una densidad igual a  $2700 \text{ kg/m}^3$ , igual a la matriz. Las fuerzas de arrastre se calculan a partir del campo de velocidades del fluido alrededor de la partícula, determinado mediante el método de elementos finitos.

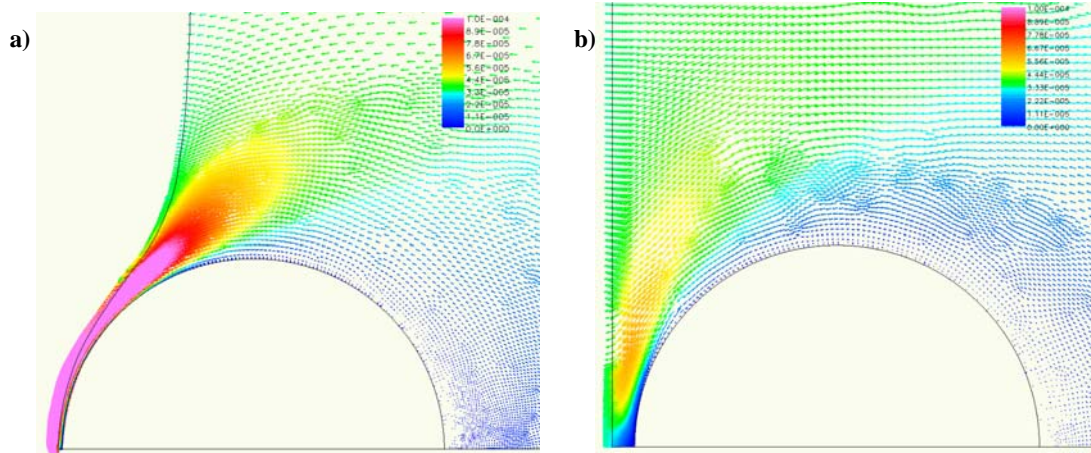


Figura 5. Flujo de fluidos alrededor de la partícula, (a) interfase cóncava, (b) interfase plana (Rosenberger et al., 2005).

En la Fig. 5 se muestra un resultado típico de flujo de fluidos para una interfase cóncava y plana (Rosenberger et al., 2005). La interfase plana se obtiene utilizando conductividades térmicas iguales para la partícula y la matriz. En la Fig. 5 se observa que el flujo alrededor de la partícula es continuo y laminar. Una diferencia entre los flujos de las interfaces cóncava y plana se observa en la distribución de velocidades., cuando la interfase es cóncava se puede observar que los mayores valores de velocidad del flujo se encuentran en el canal partícula-interfase. En ese canal el valor de  $Re \ll 10^{-6}$  en todos los casos simulados, lo que asegura un flujo laminar en el modelo.

El rango de velocidades impuesto varió entre  $1 \times 10^{-15}$  m/s y  $1 \times 10^{-4}$  m/s el cual abarca las velocidades de interfase típicos en la solidificación de metales y donde se podría encontrar una partícula en estado estacionario de repulsión. El valor de  $Fa$  fue calculado para cada velocidad, tamaño de partícula y configuración geométrica interfase-partícula. Graficando los valores de  $Fa$  en función de  $h$  a una misma velocidad, ver Fig. 6, se observa que cuando la interfase es cóncava, la fuerza de arrastre es mayor en al menos un orden de magnitud que el correspondiente a una interfase plana a un mismo  $h$ .

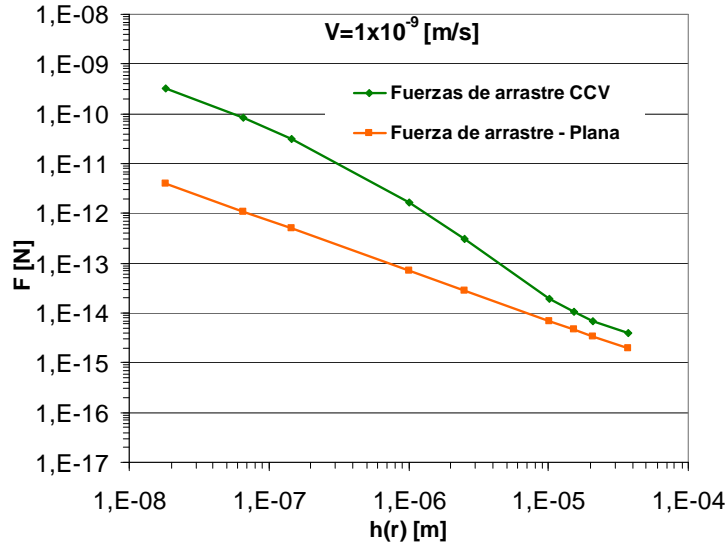


Figura 6. Fuerzas de arrastre en función de la separación partícula-interfase para interfases planas y cóncavas. R = 50 micrones.

### 3.3 El modelo de fuerzas de repulsión

El resultado para R=50 micrones y diferentes separaciones partícula a igual velocidad de -

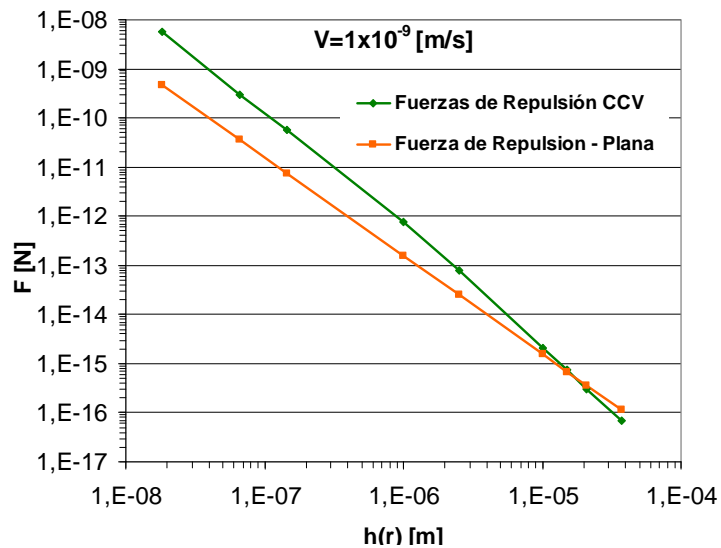


Figura 7. Fuerzas de repulsión en función de la separación partícula-interfase para interfases planas y cóncavas. R = 50 micrones.



interfase se muestra en la Fig.7. Se puede observar que la fuerza de repulsión para una interfase cóncava es mayor que el correspondiente a una interfase plana cuando la distancia es menor que  $2 \times 10^{-5}$  m.

Éste resultado concuerda con lo esperado, ya que la curvatura de la interfase al aproximarse a la partícula la rodea ocasionando mayor interacción, y por lo tanto mayor repulsión.

El punto de equilibrio se calcula igualando los resultados de la simulación de las  $F_a$  con los calculados de  $F_r$ . De esta manera se calcularon los valores de  $h_{eq}$  y  $V_{eq}$  que se muestra en la Fig. 8. En ésta figura se observa que, cuando la velocidad aumenta el  $h$  de equilibrio disminuye tanto en interfasas planas como en cóncavas para los tamaños de partícula estudiados.

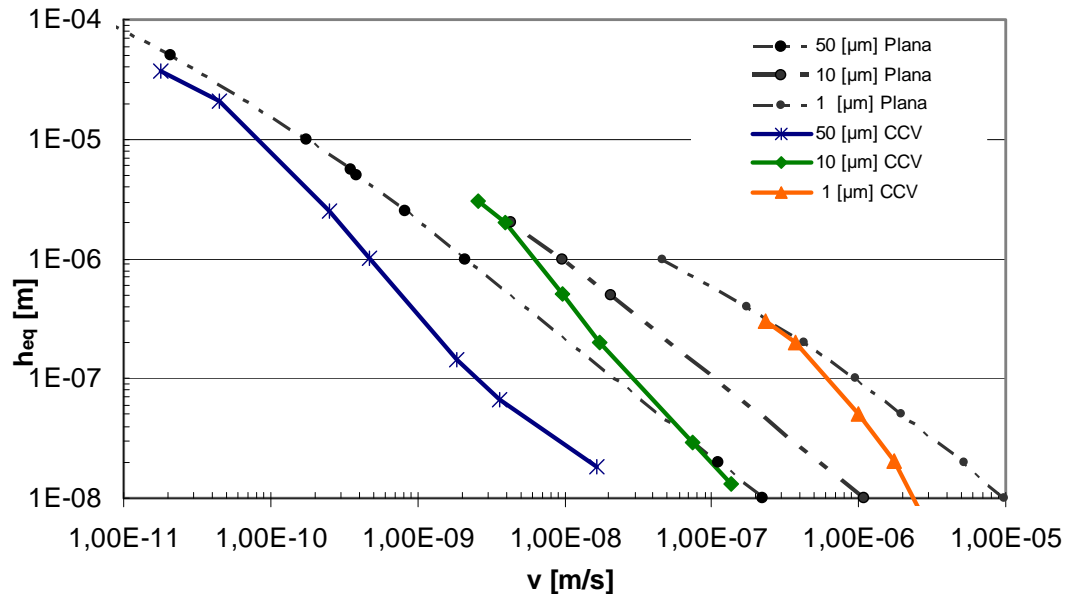


Figura 8. Influencia de la velocidad de la interfase: valores de  $h_{eq}$  para interfasas cóncava y plana,  $R = 1, 10 \text{ y } 50 \text{ } \mu\text{m}$

Para un determinado tamaño de partícula hay una región del gráfico  $h_{eq}$  versus velocidad donde las curvas de interfasas plana y cóncava se superponen. En ésta región ambas interfasas presentan una configuración semejante. Como se puede observar en la Fig. 8, este hecho se da en la región de bajas velocidades y depende del tamaño de partícula. Así para un radio de partícula de 50 micrones esta región comprende velocidades menores a  $4 \times 10^{-11}$  m/s; y para partículas de 1 micrón de radio la región comprende velocidades menores a  $3 \times 10^{-7}$  m/s.

Al aumentar la velocidad de las interfasas las separaciones de equilibrio difieren entre las interfasas plana y cóncava. Ésta diferencia alcanza un valor de hasta un orden de magnitud menor para las interfasas cóncavas.

Por definición la velocidad crítica es la velocidad de equilibrio a  $h = 10^{-8}$  m, que es la

distancia mínima para que un fluido conserve las propiedades que lo definen (Sharp y Adrian, 2005; Travis et al.,1997). Se pueden usar los resultados de la Fig. 8 para determinar la velocidad crítica por extrapolación para una interfase cóncava, se obtuvieron valores iguales a un orden de magnitud menor que para una interfase plana. Por lo tanto, a una misma velocidad de movimiento de interfase la partícula se ubica más lejos de una interfase plana que de una interfase cóncava. Estos resultados indican que puede esperarse una mayor probabilidad de que ocurra el atrapado de la partícula en el sólido cuando la interfase es cóncava respecto a una interfase plana.

La curva que describe el modelo que relaciona  $h_{eq}$  y  $V_{eq}$  en interfase cóncava tiene un punto de inflexión en un gráfico log-log en los tres tamaños de partícula estudiados, lo que establece una diferencia notable con respecto al modelo de interfase plana que tiene una variación casi lineal en el mismo gráfico.

#### **4 CONCLUSIONES**

De los resultados de los modelos presentados en este trabajo sobre la interacción entre una partícula y una interfase de solidificación, se obtuvieron las siguientes conclusiones:

1. Las fuerzas de arrastre y de repulsión obtenidas con el modelo son hasta un orden de magnitud mayores para las interfases cóncavas respecto a las interfases planas.
2. La curva que describe el modelo que relaciona la separación de equilibrio y la velocidad de interfase en el equilibrio para una interfase cóncava tiene un punto de inflexión, lo que establece una diferencia notable con respecto al modelo de interfase plana el cual que presenta una tendencia casi lineal en un gráfico log-log. Diferenciándose entre si en la región de mayores velocidades.
3. La separación de equilibrio entre la partícula y la interfase en el estado de repulsión estacionario es menor para un interfase cóncava que para una interfase plana.
4. La velocidad crítica obtenida a partir del modelo es un orden de magnitud menor para la interfase cóncava respecto de la plana en cada tamaño de partícula.
5. A velocidades de interfase bajas la separación de equilibrio en una interfase cóncava es similar a la de la interfase plana.

#### **5 AGRADECIMIENTOS**

Los autores agradecen al CONICET por el soporte financiero.

#### **6 REFERENCIAS**

Agaliotis, E., Rosenberger, M.R., Ares, A.E., Schvezov, C.E., Numerical calculation of the drag force applied to particle pushing, *Journal of Crystal Growth*, 310(7-9):1366-1370, 2008.

- Bolling, G. F., Cisse, J., A theory for the interaction of particles with a solidifying front, *Journal of Crystal Growth*, 10:56-66, 1971.
- Catalina, A.V., Mukherjee, S., Stefanescu, D., A dynamic model for the interaction between a solid particle and an advancing solid/liquid interface, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 31:2559-2568, 2000.
- Chapra, S.C.; Canale, R.P., *Numerical methods for engineers*, McGraw-Hill, 2002.
- Chernov, A. A. and Temkin, D. E., *1976 Crystal Growth and Materials*, 3-77, (North Holland, Amsterdam. Ed. by E. Kaldis and H. J. Sheel, 1977.
- Corte, A.E., Vertical migration of particles in front of a moving freezing plane, *Journal of Geophysical Research*, 67(3):1085-1090, 1962.
- Fidap 8. *Fidap User's Manual*. Fluent Inc. Lebanon New Hampshire, 1998
- Garvin, J.W., Yang, Y., Udaykumar, H.S., Multiscale modeling of particle-solidification front dynamics. Part II: Pushing-engulfment transition, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 50:2969–2980, (2007).
- Hadji, L., Modelling and Asymptotic Analysis of Particle-Interfase Interaction, *Mathematical and Computer Modelling*, 36:147-156, 2002.
- Kim, J. K. , Rohatgi, P. K., The effect of the diffusion of solute between the particle and the interface on the particle pushing phenomena, *Acta Materialia* 46(4):1115-1123, 1998
- Nieves Hurtado, A.; Dominguez Sanchez, F.C., *Métodos numéricos aplicados a la Ingeniería*. Editorial CECSA, 2002.
- Pikunov, M. V., Moscow: *Metallurgizdat*, 56-67, 1957.
- Rosenberger, M.R., Agaliotis, E.M., Schvezov, C.E., *Mecánica Computacional* 24:137-150, 2005.
- Sharp, K.V.; Adrian, R.J., Transition from laminar to turbulent flow in liquid filled microtubes, *Experiments in Fluids* 36(1):741-747, 2005.
- Schvezov, C.E., “Dynamic Calculations for Particle Pushing” in *Solidification 1999*; Editores: Hofmeister, H., Rogers, J. R., Singh, N. B., Marsh, S. P. and Vorhes, P. W., Editorial TMS, 251-261, 1999.
- Travis, K.; Tood, B.; Evans, D., Departure from Navier–Stokes hydrodynamics in confined liquids, *Physics Review E* 55:4288-4295, 1997.
- Uhlmann, D. R., Chalmers B. and Jackson K. A., *Journal of Applied Physics* 35:2986-2993, 1964.