



УДК 621.74

Поступила 20.09.2021

КОНЦЕПЦИЯ ЛОГНОРМАЛЬНОЙ ДЕНДРИТНОЙ НЕОДНОРОДНОСТИ ДЛЯ АНАЛИЗА ЛИТОЙ СТРУКТУРЫ И МОДЕЛИРОВАНИЯ ЛИТЕЙНЫХ ПРОЦЕССОВ

Л. Ю. ДОБОШ, К. Д. ЛЕ, В. М. ГОЛОД, Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, г. Санкт-Петербург, Россия, ул. Политехническая, 29. E-mail: dobosh87@mail.ru

На основе статистического анализа микроструктуры в мезомасштабном исследовании серии образцов из сплавов алюминия и стали установлена адекватность логнормального распределения относительных размеров вторичных междуосных промежутков дендритов. Математический аппарат логнормального распределения, обобщенные параметры которого получены в работе, использован для расчета кинетики мезомасштабной статистической неоднородности неравновесной дендритной структуры и структурно-зависимых характеристик непрерывного скелета твердой фазы, определяющих ее прогнозируемую фильтрационную проницаемость при моделировании формирования образующихся усадочных пустот.

Адекватность этих решений для многокомпонентных сплавов обеспечена путем интегрированного использования программного и информационного обеспечения для термодинамического расчета равновесных физико-химических и теплофизических параметров сплавов, а также опубликованных экспериментальных данных по температурно-зависимым значениям коэффициентов диффузии компонентов сплава. Результаты компьютерного моделирования структурно-фазовых превращений при неравновесной кристаллизации получены путем системного анализа сопряженной капиллярно-диффузионной коалесценции вторичных дендритных ветвей в сочетании с учетом мезомасштабной эволюции температуры, доли твердой фазы и состава остаточной жидкой фазы при прогнозируемом подавлении диффузии в твердой фазе.

Совместное использование указанного аппарата системного анализа в комплексе с обобщенной моделью логнормального распределения междуосных промежутков дендритных ветвей позволяет для исследуемой фасонной отливки с учетом технологических условий ее изготовления, оцениваемых на основе данных компьютерного моделирования затвердевания фасонной отливки, прогнозировать возникающую локальную структурную неоднородность и химическую микронеоднородность. Получаемая информация о локальном распределении мезомасштабных параметров дендритной структуры и их изменении в ходе затвердевания позволяет внести радикальное уточнение в оценку дефицита фильтрационного потока расплава при моделировании формирования усадочных пустот.

Ключевые слова. Мезомасштабная дендритная структура, капиллярно-диффузионная коалесценция, логнормальная статистическая неоднородность, компьютерный системный анализ, моделирование неравновесной кристаллизации, многокомпонентные сплавы.

THE CONCEPT OF LOGNORMAL DENDRITIC HETEROGENEITY FOR THE ANALYSIS OF CAST STRUCTURE AND MODELING OF CASTING PROCESSES

L. Yu. DOBOSH, K. D. LE, V. M. GOLOD, Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russia, 29, Politechnicheskaya str. E-mail: dobosh87@mail.ru

Based on the statistical analysis of the microstructure in a mesoscale research of a series of samples made of aluminum and steel alloys, the adequacy of the lognormal distribution of the relative sizes of the secondary interstitial spaces of dendrites was established. The mathematical apparatus of the lognormal distribution, the generalized parameters of which are obtained in the work, is used to calculate the kinetics of the mesoscale statistical inhomogeneity of the nonequilibrium dendritic structure and the structure-dependent characteristics of the continuous skeleton of the solid phase that determine its predicted filtration permeability when modeling the formation of the resulting shrinkage voids.

The adequacy of these solutions for multicomponent alloys is ensured by the integrated use of software and information support for the thermodynamic calculation of the equilibrium physic – chemical and thermophysical parameters of alloys, as well as published experimental data on temperature – dependent values of the diffusion coefficients of the alloy components. The results of computer modeling of structural-phase transformations during nonequilibrium crystallization were obtained by system analysis of conjugate capillary-diffusion coalescence of secondary dendritic branches in combination with taking into account the mesoscale evolution of temperature, the fraction of the solid phase and the composition of the residual liquid phase with the predicted suppression of diffusion in the solid phase.

The combined use of this system analysis apparatus in combination with a generalized model of the lognormal distribution of the inter-axial intervals of dendritic branches makes it possible to predict the emerging local structural heterogeneity and chemical micro-heterogeneity for the studied shaped casting, taking into account the technological conditions of its manufacture, estimated on the basis of computer modeling of the solidification of the shaped casting. The obtained information about the local distribution of mesoscale parameters of the dendritic structure and their changes during solidification allows us to make a radical refinement in the estimation of the melt filtration flow deficit when modeling the formation of shrinkage voids.

Keywords. Mesoscale dendritic structure, capillary-diffusion coalescence, lognormal statistical heterogeneity, computer system analysis, modeling of nonequilibrium crystallization, multicomponent alloys.

Прогноз качества литых изделий является одной из наиболее значимых практических задач и актуальных научных проблем, решение которых лежит на стыке теории и технологии литья и примыкающей области материаловедения литейных сплавов [1–3]. Важнейшим из параметров формирующейся литой микроструктуры являются размеры вторичных междоусных промежутков дендритов λ_2 , от которых, согласно опытным данным и теоретическим представлениям, зависят размеры и расположение газовых и неметаллических включений, морфология газоусадочной микропористости, развитие дендритной ликвации, а также формирование горячих трещин.

Современное состояние компьютерных моделей для оценки междоусных промежутков [4–7] не соответствует актуальным потребностям теории и технологии литья, поскольку эти оценки не отвечают требованиям универсальности применяемых статистических формул или базируются на аналитических выражениях, адекватность которых носит лишь локальный характер вследствие использования условных допущений. Критический характер проблемной ситуации со структурной диагностикой литейных сплавов, стабильно отмечаемый в течение последних десятилетий [4–6], обусловлен системным характером накопившихся нерешенных задач анализа закономерностей формирования *мезомасштабной* дендритной структуры, порожденных сосредоточением усилий исследователей на объектах макро- и микромасштаба. В числе таких задач наиболее важно рассмотрение следующих аспектов [7–9]:

- непрерывная коалесценция мезомасштабного ансамбля вторичных дендритных ветвей в результате капиллярно-диффузионного эффекта Гиббса-Томсона после прекращения их продольного роста вследствие смыкания и образования непрерывной твердой фазы;
- термодинамически обусловленный ход равновесного фазового превращения при кристаллизации многокомпонентных сплавов с учетом температурно-зависимого изменения термодинамических параметров;
- неравновесный характер кристаллизации при частичном подавлении аддитивно-независимого диффузионного переноса компонентов сплава в мезообъеме формирующейся твердой фазы;
- системное физико-химическое взаимодействие сопряженно-протекающих во времени и в пространстве затвердевающего сплава процессов теплообмена, выделения твердой фазы и межфазного перераспределения компонентов сплава.

При совместном учете перечисленных условий, реализованных в ходе затвердевания экспериментальной серии многокомпонентных сплавов на основе алюминия и железа, включая кристаллизацию тройных алюминиевых сплавов с расчетом этапа формирования эвтектических фаз [10], а также многокомпонентных углеродистых и низколегированных сталей перитектического типа [11], было выполнено компьютерное моделирование непрерывной эволюции *среднего* размера междоусных промежутков дендритов $(\lambda_2)_{cp}(\tau)$ в течение всего периода неравновесной кристаллизации локальной (мезомасштабной) ячейки исследованных сплавов (рис. 1). Размеры мезомасштабной сетки, использованной в представленных расчетах, обеспечивают получение равномерного распределения температур (при соответствующем значении критерия $Bi \ll 1$) и диффузионного выравнивания состава жидкой фазы.

Особое внимание при этом было уделено адекватности используемого информационного обеспечения, в состав которого входят температурно-зависимые значения термодинамических параметров диаграммы состояния k (коэффициента распределения) и p (тангенса угла наклона поверхности ликвидуса для всех компонентов), объемной теплоты кристаллизации L и теплоемкости c , критических координат ликвидуса, перитектического и эвтектического превращения, а также значения тепловой активности формы, плотности фаз и коэффициентов диффузии компонентов [9].

Адекватность используемых компьютерных моделей и достоверность полученных результатов (рис. 2) [8, 12] подтверждена проведенными экспериментами для ряда отливок различной конфигурации путем термического анализа условий затвердевания в сочетании с металлографической регистрацией параметров дендритной и эвтектической структуры.

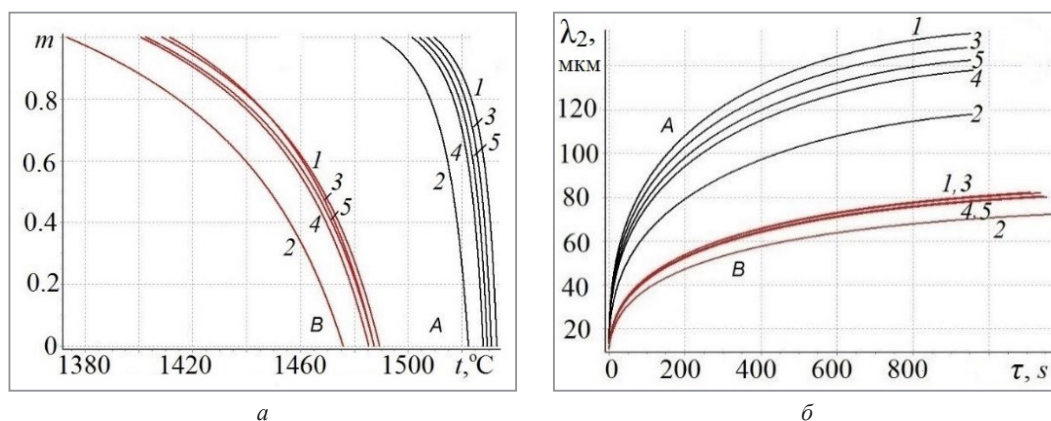


Рис. 1. Расчетное изменение доли твердой фазы $m(t)$ (а) и среднего размера междуосных промежутков $(\lambda_2)_{cp}(\tau)$ (б) в сплавах, различающихся содержанием углерода (I), в сериях А (Fe-0.06% С) и В (Fe-0.60% С) при введении по 1% Si (2), Cr (3), Mn (4) и Ni (5)

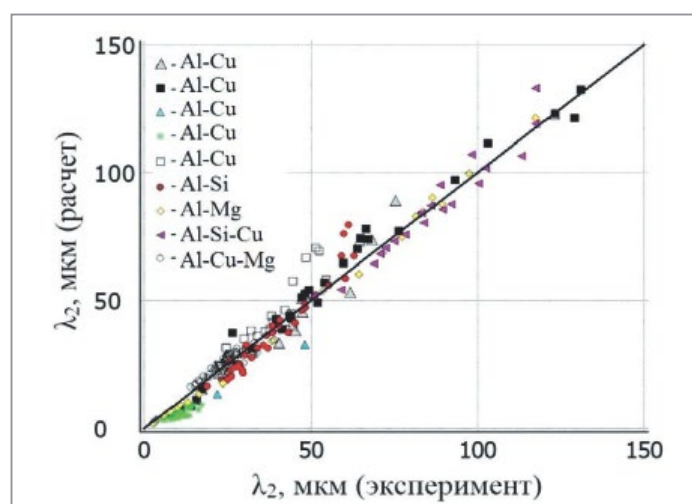


Рис. 2. Сопоставление расчетных значений среднего размера $(\lambda_2)_{cp}$ с опытными данными для двойных и тройных алюминиевых сплавов при различных условиях теплоотвода

На основе систематического контроля дендритной микроструктуры многокомпонентных сплавов алюминия и железа [10, 11], получаемых при варьировании состава исследуемых сплавов, размеров и конфигурации заливаемых образцов (табл. 1), в результате серии локальных измерений (от 50 до более 100) были получены статистически-достоверные данные о размерах вторичных междуосных промежутков дендритов λ_2 , которые являются основным объектом последующего статистического анализа.

Таблица 1. Химический состав и условия затвердевания исследованных образцов

Основа сплавов	Основные компоненты, %			Интервал кристаллизации, К	Время затвердевания, с
	Si	Cu	Mg		
Al	0,6–10,5	0,1–5,0	0,07–5,0	15–110	5–900
Fe	0,11–1,50	0,12–0,50	0,58–1,60		

Дендритная структура в исследованных условиях *объемного* затвердевания сплавов представляет хаотический ансамбль $X[\lambda_2]$ различно ориентированных боковых ветвей, отличающихся протяженностью и толщиной (рис. 3, а и 4, а). Для упорядочения многочисленных результатов измерений размеров вторичных междуосных промежутков были построены статистические гистограммы распределения их относительных размеров в долях от локального среднего значения $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ (рис. 3, б и 4, б), что выявило их явно выраженную положительную асимметрию, масштаб которой количественно близок для сплавов разного состава, времени затвердевания и размера междуосных промежутков (левая часть табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Сводные статистические параметры дендритной структуры сплавов

Основа сплавов	Относительные статистические параметры структуры сплавов $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$				Логнормальные статистические параметры структуры сплавов $Z[\ln(\lambda_2/(\lambda_2)_{cp})]$			
	Y^*_{min}	Y^*_{cp}	Y^*_{max}	A^*_Y	Z^*_{min}	Z^*_{cp}	Z^*_{max}	A^*_Z
Al	0,50	1,10	1,90	0,33	-0,28	-0,001	0,27	0,002
Fe	0,63	1,05	2,20	0,58	-0,68	-0,030	0,56	-0,060

Для сплава Al-5% Cu восходящая ветвь гистограммы $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ (рис. 3, б) удалена от вершины, где $\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}=1,0$, на относительное расстояние $\lambda_2/(\lambda_2)_{cp} \approx 0.5$ при значительно большей протяженности нисходящей ветви $[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp} \gg 1]$, что соответствует положительной асимметрии их размеров. Для исследованного массива стальных сплавов (рис. 4, б) аналогичные параметры находятся в том же соотношении $[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp} < 0,5]$ и $[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp} \gg 1]$.

Выявленная значительная асимметрия относительных гистограмм (рис. 3, б для алюминиевых сплавов и рис. 4, б для стали) показывает, что оба рассматриваемых массива $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ существенно отклоняются от *нормального* статистического распределения случайных величин [13]:

$$F(x, \mu, \sigma) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^x \exp\left[-\frac{1}{2\sigma^2}(x - \mu)^2\right] dx \tag{1}$$

(x – переменная; μ – среднее значение x ; σ – стандартное отклонение x от среднего), для которого характерно *аддитивное* взаимодействие компонентов и выполняется правило симметрии ($A=0$).

Иной характер обнаруживают дисперсные ансамблевые композиции, обусловленные *мультипликативным* взаимодействием составляющих компонентов, которые характеризуются накоплением получаемого эффекта, связанного с происходящими при этом процессами структурных изменений системных параметров, которые могут иметь механическую, экономическую или популяционную природу [14, 15]. Преобразование данных массивов $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ в соответствии с концепцией *логнормального* распределения случайных величин:

$$F(z, \mu, \sigma) = \frac{1}{\sigma z\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^z \exp\left\{-\frac{1}{2\sigma^2}[\ln(z) - \mu]^2\right\} dx \tag{2}$$

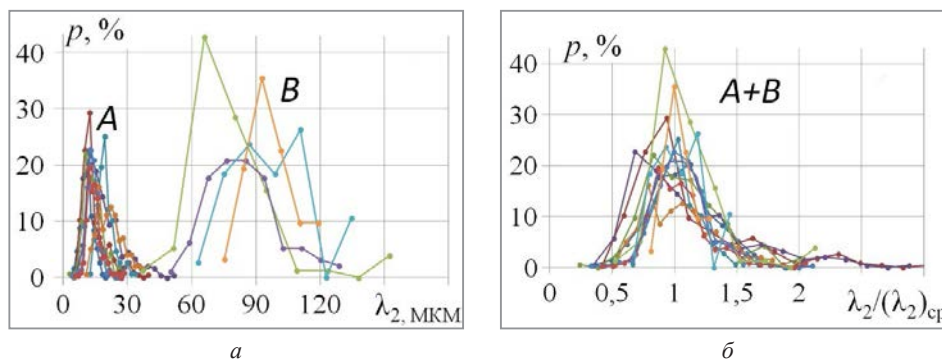


Рис. 3. Гистограмма распределения размеров вторичных междоусных промежутков дендритов сплава Al-5% Cu при заливке в кокиль (A) и песчаную форму (B) для их исходных (a) $X[\lambda_2]$ (A и B) и относительных (б) значений $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ (A+B)

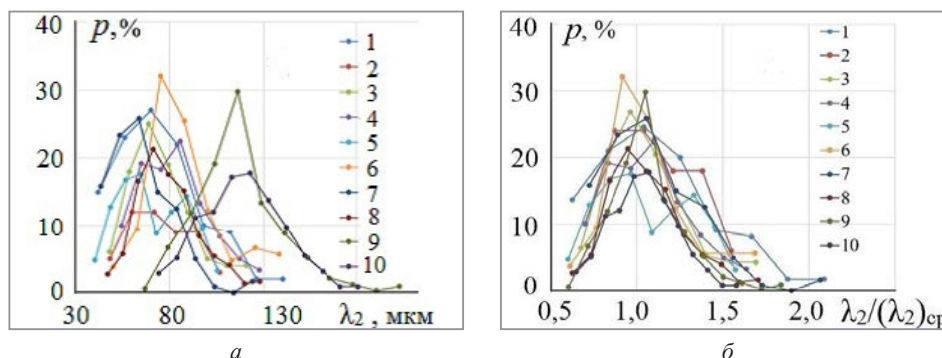


Рис. 4. Гистограмма распределения частоты размеров вторичных ветвей дендритов для исходных $X[\lambda_2]$ (a) и относительных значений $Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ (б) междоусных промежутков низколегированных сталей

позволяет получить сводные гистограммы $Z[\ln(\lambda_2/(\lambda_2)_{cp})]$, представленные для исследованных алюминиевых сплавов и низколегированных сталей на рис. 5, а, б (z – переменная; μ – среднее значение $\ln(z)$; σ – стандартное отклонение $\ln(z)$ от его среднего значения).

Проверка гипотезы о логнормальном характере сводных исследованных массивов $Z[\ln(\lambda_2/(\lambda_2)_{cp})]$, проведенная с использованием стандартной процедуры на основе критерия Хи-квадрат [13], подтверждает для всех представленных массивов логнормальный характер (с доверительной вероятностью 0,95), что позволяет обобщить эти результаты путем их объединения в форме трехпараметрического уравнения для количественной оценки вероятности распределения междуосных промежутков исследованных сплавов:

$$f[\lambda_2, \lambda_2/(\lambda_2)_{cp}, \mu^*, \sigma^*] = \frac{1}{[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}] \sigma^* \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(z - \mu^*)^2}{2(\sigma^*)^2}\right], \quad (3)$$

где $z = \ln[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$; $z_{min} \geq z_{min}^*$; $z_{max}^* \leq z_{max}$; значения z_{min}^* и z_{max}^* определяются на основе осредненной экспериментальной оценки выборочных граничных характеристик.

Приведенные на рис. 5 и в табл. 2 (правая часть) данные экспериментально полученных логнормальных гистограмм демонстрируют коллективную симметрию их положительных и отрицательных ветвей, близкие к нулевому значению коэффициенты асимметрии и равенство (с доверительной вероятностью 0,95) левосторонних ($Z_{cp}^* - Z_{min}^*$) и правосторонних ($Z_{max}^* - Z_{cp}^*$) отклонений от нулевого значения, где $\lambda_2/(\lambda_2)_{cp} = 1$, при совпадающих координатах $Z_{cp}^* \approx 0$ эмпирических вершин гистограмм для обеих групп исследованных сплавов.

Выявленные статистические параметры обобщенного логнормального распределения междуосных промежутков для исследованных образцов стали, успешно используемые при дальнейших расчетах [16, 17], имеют следующие значения:

$$Z_{min}^* = -0,816, Z_{max}^* = 0,816, \mu^* = 0, \sigma^* = 0,25, A^* = 0. \quad (4)$$

С использованием этих параметров построена обобщенная пунктирная кривая изменения вероятности $P(z)$ логнормальных значений массива $Z[\ln(\lambda_2/(\lambda_2)_{cp})]$ на рис. 5, б, соответствующая расчетному уравнению:

$$P\{z \in [a; b]\} = F\left(\frac{b - \mu^*}{\sigma^*}\right) - F\left(\frac{a - \mu^*}{\sigma^*}\right), \quad (5)$$

где значения мезомасштабной частоты в заданном интервале [$a = z_{min}$, $b = z_{max}$] определены на основе табличных характеристик нормализованного распределения [13].

Сопоставление диаграмм, приведенных на рис. 5, а, б, свидетельствует о том, что обобщенные параметры логнормального распределения междуосных промежутков для исследованных образцов алюминиевых сплавов имеют более узкий размах граничных характеристик ($Z_{min}^* = -0,50$; $Z_{max}^* = 0,50$;) по сравнению со сталью, что связано с отличием физико-химических параметров этих сплавов.

Приведенные диаграммы мультипликативного характера (рис. 5) отражают активную роль, которую играют в условиях последовательной коалесценции процессы капиллярно-диффузионного преобразования дендритной морфологии в ходе *микромасштабных* фазовых превращений при неравновесной кристаллизации. Эти процессы носят *автомодельный* характер, поскольку проявляются единообразно

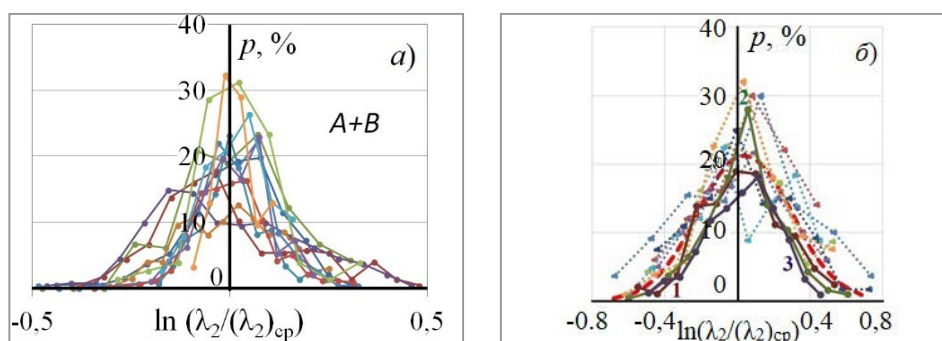


Рис. 5. Сводные диаграммы частоты $p[\ln(\lambda_2/(\lambda_2)_{cp})]$ относительных размеров вторичных междуосных промежутков дендритов в литых образцах из алюминиевых сплавов (а) и низколегированных сталей (б) в сопоставлении с обобщенной кривой распределения частоты (пунктир)

в пространственных (от X_{\min} до X_{\max}), температурных (от t_L до t_S), концентрационных (от C_L до C_S) и временных (от τ_L до τ_S) условиях объемно протекающего процесса коалесценции с участием множества локально сопряженных и случайно-ориентированных дендритных ветвей, коалесцирующих между собой при непрерывном понижении температуры, увеличении доли твердой фазы и изменении состава жидкой фазы [16, 17]. Результатом этого процесса является взаимосогласованное увеличение как минимальных, так и максимальных размеров междуосных промежутков при одновременном возрастании их размаха (рис. 6), являющегося движущей силой продолжающейся коалесценции.

Отличительной чертой полученного набора уравнений и выявленной статистической устойчивости эмпирических параметров логнормальных гистограмм является возможность их использования для решения *обратной задачи* – расчета относительной доли дендритов, междуосные промежутки которых находятся в заданном интервале значений $\Delta X[\lambda_2]$ или $\Delta Y[\lambda_2/(\lambda_2)_{cp}]$ при количественной оценке мезомасштабной структурной неоднородности. Для решения этой задачи, играющей важную роль в моделировании кинетики ряда литейных процессов [2, 4, 5, 10, 11 и др.], выполняется численное интегрирование уравнений (3) и (5) с использованием приведенного набора обобщенных параметров и производится соответствующий расчет локальной или интервальной частоты дендритных ветвей различного масштаба.

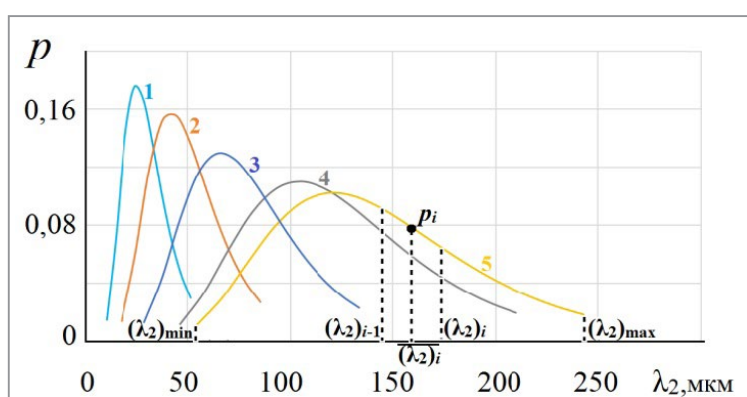


Рис. 6. Гистограмма локальной дендритной неоднородности мезомасштабного распределения междуосных промежутков боковых ветвей с изменением доли твердой фазы при затвердевании стали 50XГЛ $m(\tau)$: 0,1(1); 0,2(2); 0,4(3); 0,8(4); 1,0 (5)

При использовании программного обеспечения для системного компьютерного моделирования кинетики неравновесного хода затвердевания фасонной отливки результаты локального анализа хода затвердевания $t(\tau)$, $m(\tau)$ и эволюции средних размеров междуосных промежутков $(\lambda_2)_{cp}(\tau)$ [18] являются базой для расчета мезомасштабной кинетики распределения междуосных промежутков твердой фазы $m(\tau)$ (рис. 6).

На основе оценки структурной дендритной неоднородности реализуется моделирование локальной фильтрационной задачи питания с учетом изменения коэффициента проницаемости дендритного скелета K_p в зависимости от мезомасштабной доли твердой фазы $m(\tau)$ и изменения размеров междуосных промежутков $\lambda_2(\tau)$ [18, 19]:

$$K_p = CK_0 (\lambda_2)_{\text{эф}}^2 \frac{m_L^3}{(1 - m_L)^2},$$

где C – константа Козени; K_0 – коэффициент, отражающий извилистость внутридендритных каналов, который нередко при вычислениях в силу информационной неопределенности принимают неизменным; m_L – доля остаточной жидкой фазы.

Учет логнормальной оценки дендритной неоднородности в пределах мезомасштабной ячейки приводит к значительному повышению эффективного значения локального коэффициента проницаемости (на 15–20%).

ЛИТЕРАТУРА

1. Флемингс М. Процессы затвердевания. М.: Мир, 1977. 423 с.
2. Stefanescu D. M. Science and engineering of casting solidification. – Switzerland, Springer, 2015. 556 p.
3. Курц У., Фишер Д. Фундаментальные основы затвердевания. М.: Ижевск: Институт компьютерных исследований, 2013. 300 с.
4. Rappaz M. Modeling and characterization of grain structure and defects in solidification // Curr. Opin. Sol. State Mater.Sci. 20 (2016). 37–45.

5. Kurz W., Rappaz M., Trivedy R. Progress in modeling solidified microstructure in metals and alloys. Part 2: dendrites from 2001 to 2018. *Int. Mater. Reviews*, 64(6) (2019). 311–354.
6. Souhar Y., De Felice V.F., Beckerman C., Combeau H., Založnik M. Three-dimensional mesoscopic modelling of equiaxed dendritic solidification of a binary alloy // *Comput. Mater. Sci.* 112 (2016). 304–317.
7. Голод В. М., Емельянов К. И. Системный анализ морфологической эволюции дендритной структуры стали // *Черные металлы*. 2014. № 4. С. 49–54.
8. Golod V.M., Dobosh L. Ju. Computer material science of structure-phase transformation in casting aluminum alloys // *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. and Eng.*, 192 (2017).
9. Голод В. М. Компьютерный анализ литейной технологии, проблемы его информационного обеспечения и адаптации к условиям производства // *Вестн. Удмуртского ун-та. Физика. Химия*. 2008. Вып. 1. С. 67–87.
10. Голод В. М., Добош Л. Ю. Компьютерное моделирование и системная диагностика дендритной структуры многокомпонентных алюминиевых сплавов // *Литейное производство*. 2020. № 9. С. 23–30.
11. Голод В. М., Цветков А. С., Теплухина И. В., Ле К. Д. Анализ и прогнозирование дендритной неоднородности, возникающей в стальных отливках при кристаллизации // *Литейное производство*. 2020. № 9. С. 17–22.
12. Голод В. М., Добош Л. Ю. Диагностика дендритной структуры многокомпонентных алюминиевых сплавов // *Литье и металлургия*. 2018. № 1(90). С. 55–62.
13. Вероятностные разделы математики / Под ред. Ю. Д. Максимова. СПб.: Изд-во «Иван Федоров», 2001. 592 с.
14. Хан Т., Шапиро С. Статистические модели в инженерных задачах. М., 1969. 388 с.
15. Колмогоров А. Н. О логарифмически-нормальном законе распределения размеров частиц при дроблении // *ДАН СССР*. 1941. Т. XXXI (2). С. 99–101.
16. Голод В. М., Ле К. Д. Обобщенное уравнение мезомасштабного распределения вторичных междоусных промежутков дендритов для стального литья // *Материаловедение. Энергетика*. 2020. № 3(26). С. 101–116.
17. Голод В. М., Цветков А. С., Теплухина И. В. Системное моделирование формирования локальной дендритной и ликвационной неоднородности в слитке из реакторной стали аустенитного класса // *Материаловедение. Энергетика*. 2020. № 2(26). С. 114–127.
18. Ле К. Д., Голод В. М. Исследование неравновесной кристаллизации многокомпонентных перитектических сплавов на основе железа // *Кристаллизация: компьютерное моделирование, эксперимент, технологии. Тез. VIII междунар. конф. УдГУ, Ижевск*, 2019. С. 121–123.
19. Golod V.M., Dobosh L. Ju., Kim A. E. Evolution of filtration permeability of dendrite structure in the conditions of capillary-diffusion coalescence of the secondary side branches // *Eur. Phys. J. Spec. Top.* 229 (2020). P. 225–237.