

MODELO NUMERICO PARA LA SOLIDIFICACION DE ESFERAS METALICAS
OBTENIDAS POR ATOMIZACION

Eduardo E. Vicente
Departamento de Materiales.
Comisión Nacional de Energía Atómica.
Buenos Aires, Argentina.

RESUMEN

Se presenta un modelo numérico para el estudio del campo térmico y de la cinética de la interfaz sólido-líquido durante la solidificación de esferas de metales puros con enfriamiento superficial convectivo (problema de frontera libre o problema tipo Stefan a una fase). Se utiliza el método de seguimiento de la interfaz en diferencias finitas implícito y con malla variable. La solución numérica muestra satisfactoria concordancia con aproximaciones analíticas asintóticas (para enfriamiento ideal y newtoniano). Finalmente, el modelo es aplicado a la producción de partículas esféricas obtenidas por atomización del metal fundido con gas inerte.

ABSTRACT

A numerical model for the study of the thermal field and the kinetics of the solid-liquid interface during solidification of spheres of pure metals with convective surface cooling (free boundary problem or one-phase Stefan like problem), is presented. Implicit finite difference moving boundary tracking method, with a variable grid, is used. A satisfactory agreement between numerical solution and asymptotic analytical approaches (both for ideal and newtonian cooling), is shown. Finally, the model is applied to the production of spherical particulates obtained by inert gas atomization from the melt.

INTRODUCCION

Una de las técnicas más utilizadas para la producción de polvos metálicos es la atomización con gas [1]. En este proceso un metal fundido, que escurre por un delgado orificio practicado en el fondo de un recipiente, es fragmentado por un chorro de gas (nitrógeno, argón, helio) sub o supersónico (0,2-2,5 Mach) en pequeñas gotas (10-1000 μm) que tienden a esferoidizarse por efecto de la tensión superficial del líquido, solidificando luego por enfriamiento convectivo y, en menor medida, radiativo. Los polvos metálicos así obtenidos pueden ser producto final o materia prima para el conformado de piezas por procedimientos de pulvimetalurgia.

Por otra parte, la atomización está siendo evaluada como técnica prometedora para la obtención de metales y aleaciones con estructuras metaestables mediante solidificación ultrarrápida [2-5].

El conocimiento de variables tales como velocidad de enfriamiento, velocidad de solidificación, tiempo total de solidificación, etc., en función de los parámetros de atomización (propiedades del metal y del gas atomizante, diámetro de partícula, velocidad relativa partícula-gas, etc.), es de gran utilidad para la comprensión de las posibilidades y limitaciones de este proceso metalúrgico.

Mediciones directas del campo térmico o de la posición de la interfaz sólido-líquido (S-L) serían extremadamente difíciles, si no imposibles. A través de mediciones del espaciado de las ramas dendríticas en ciertas aleaciones se ha podido determinar, en forma indirecta, el orden de magnitud de las velocidades de enfriamiento que se alcanzan en atomización con gas (10^2 - 10^3 $^{\circ}\text{C}/\text{seg}$) y con agua (10^2 - 10^4 $^{\circ}\text{C}/\text{seg}$) [4].

Desde el punto de vista térmico, el proceso de atomización de un metal puro se desarrolla en tres etapas: a) enfriamiento de la fase líquida desde la temperatura de colada hasta que la superficie alcanza la temperatura de fusión del metal; b) solidificación hasta que la interfaz S-L llegue al centro de la gota; c) enfriamiento de la fase sólida hasta temperatura ambiente. Es razonable suponer que, debido a las pequeñas dimensiones de la partícula, el mecanismo dominante de transferencia de calor en la gota sea la conducción térmica. El parámetro que controla la transferencia de calor desde la esfera metálica hacia el fluido refrigerante es el número adimensional de Biot (Bi), que expresa la relación entre la conductancia térmica superficial y la conductancia térmica del metal. Las dos situaciones límites son: enfriamiento ideal ($Bi \gg 1$) y enfriamiento newtoniano ($Bi \ll 1$).

La mayor parte de los procesos de atomización pueden estudiarse con modelos de transferencia calórica newtonianos. Sin embargo, bajo las más favorables condiciones experimentales, pueden alcanzarse valores del coeficiente de transferencia calórica convectivo h tan altos como 10^5 $\text{W}/\text{m}^2\text{K}$, los

cuales se trasladan a números de Biot en el rango $10^{-2} \ll Bi \ll 1$, para metales y tamaños de partícula típicos [5].

Para el problema de conducción (o difusión) del calor no-estacionario en esferas y sin cambio de fase existe una solución analítica exacta para transferencia térmica superficial convectiva [6], y una solución analítica aproximada para transferencia térmica radiativa [7].

Para el problema de solidificación a una fase fueron propuestas: una solución analítica asintótica para enfriamiento newtoniano [8] y soluciones analíticas aproximadas para enfriamiento ideal [9] e intermedio [10].

Para el problema de solidificación a dos fases sólo ha sido publicado, a nuestro conocimiento, una solución numérica para enfriamiento intermedio [11] basada en el método de las entalpías [12].

Una técnica numérica alternativa es la de seguimiento de la interfaz o "tracking method" utilizada con éxito para problemas tipo Stefan unidimensionales a una fase [13-16].

En el presente trabajo se presenta un modelo numérico, basado en el método de seguimiento de la interfaz, para la predicción del campo térmico $T(r,t)$ en la fase sólida y de la posición de la interfaz sólido-líquido $s(t)$, durante la solidificación de esferas metálicas sin sobrecalentamiento, y con enfriamiento superficial convectivo (problema de frontera libre o problema tipo Stefan a una fase [17]), con vistas a su posterior generalización a dos fases.

FORMULACION DEL PROBLEMA

Hipótesis

Se considera una esfera de un metal puro de radio r_0 , inicialmente líquida y a su temperatura de fusión T_f (sin sobrecalentamiento) que solidifica por pérdida de calor radial (convectivo) desde su superficie. La conductancia superficial h (o coeficiente de transferencia calórica), la temperatura del fluido refrigerante (gas) T_g ($T_g \ll T_f$) y las propiedades físicas del metal se consideran constantes.

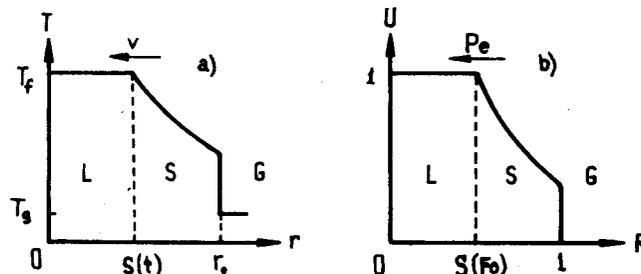


Fig. 1: Esquema del perfil térmico en una esfera parcialmente solidificada y sistema de coordenadas utilizado: a) formulación dimensional; b) formulación adimensional

Formulación dimensional (fig. 1.a):

El problema planteado implica resolver la ecuación diferencial de conducción del calor no-estacionaria en la fase sólida y en coordenadas esféricas:

$$a \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \frac{\partial T}{\partial t} \quad \text{en } s(t) \llbracket r \llbracket r_0 \text{ y } t \rrbracket 0 \quad (1)$$

con las condiciones de contorno:

$$k \frac{\partial T}{\partial r} = -h(T - T_g) \quad \text{en } r = r_0 \text{ y } t \rrbracket 0 \quad (2)$$

$$T = T_f \quad \text{en } r = s(t) \text{ y } t \rrbracket 0 \quad (3)$$

$$k \frac{\partial T}{\partial r} = \rho L \frac{ds}{dt} \quad \text{en } r = s(t) \text{ y } t \rrbracket 0 \quad (4)$$

y la condición inicial:

$$s = r_0 \quad \text{en } t = 0 \quad (5)$$

Formulación adimensional (fig. 1.b):

Las ecs. (1)-(5) pueden adimensionalizarse (ver sección Simbología).

Ecuación diferencial de conducción del calor no-estacionaria:

$$\frac{\partial^2 U}{\partial R^2} + \frac{2}{R} \frac{\partial U}{\partial R} = \frac{\partial U}{\partial Fo} \quad \text{en } S(Fo) \llbracket R \llbracket 1 \text{ y } Fo \rrbracket 0 \quad (6)$$

Condiciones de contorno:

$$\frac{\partial U}{\partial R} = -Bi U \quad \text{en } R = 1 \text{ y } Fo \rrbracket 0 \quad (7)$$

$$U = 1 \quad \text{en } R = S(Fo) \text{ y } Fo \rrbracket 0 \quad (8)$$

$$\frac{\partial U}{\partial R} = \frac{1}{Ste} \frac{dS}{dFo} \quad \text{en } R = S(Fo) \text{ y } Fo \rrbracket 0 \quad (9)$$

Condición inicial:

$$S = 1 \quad \text{en } Fo = 0 \quad (10)$$

El problema planteado consiste en hallar las funciones $U(R, Fo, Ste, Bi)$ y $S(Fo, Ste, Bi)$.

METODO NUMERICO

El método numérico empleado en este trabajo para resolver las ecs. (6)-(10) es el de seguimiento de la interfaz (o "tracking method") en diferencias finitas y con malla variable. El procedimiento consiste en la formulación del problema de Stefan como un problema de ecuaciones diferenciales ordinarias de valores iniciales (ecs. (9)-(10)) para el seguimiento de la interfaz S-L acoplado con una ecuación diferencial a derivadas parciales de tipo parabólico para el problema de difusión (ecs. (6)-(8)). El dominio espacio-temporal es una malla variable (fig. 2), donde el paso espacial ΔR es fijo, mientras que el paso temporal ΔFo_j es variable y elegido en cada nivel temporal Fo_j de manera tal que la interfaz S-L recorra exactamente un ΔR . El problema de valores iniciales se resuelve con un método predictor-corrector. En el paso corrector la evaluación de la función U se efectúa iterativamente mediante una discretización implícita de la ecuación parabólica (6). Detalles de la técnica pueden hallarse en las refs. [13-16], aplicada a problemas de Stefan unidimensionales. Aquí sólo nos limitaremos a desarrollar aquellos aspectos particulares del problema encarado.

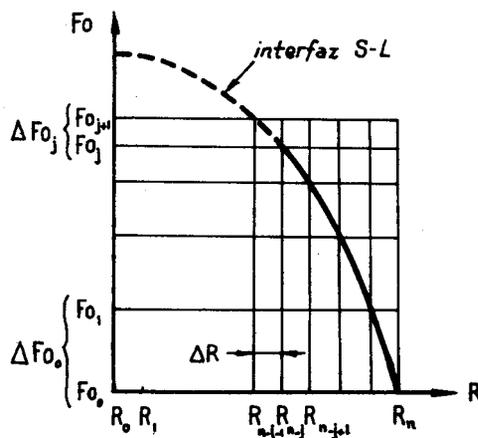


Fig. 2: Malla variable con paso espacial fijo y paso temporal variable.

De la discretización de la ecuación diferencial (6), según un esquema implícito, resulta la ecuación en diferencias:

$$\begin{aligned}
 & - (1-1/i)p_j U_{i-1,j+1} + (1+2p_j)U_{i,j+1} - (1+1/i)p_j U_{i+1,j+1} = \\
 & = U_{i,j} \quad (\text{para } 0 \leq n-j \leq i \leq n)
 \end{aligned} \tag{11}$$

donde $U_{i,j}$ denota $U(R_i, Fo_j)$ y

$$p_j = \frac{\Delta Fo_j}{(\Delta R)^2} \tag{12}$$

Variando i a través de los nodos de la malla se obtiene un sistema de ecuaciones algebraicas para el cálculo del vector de temperaturas U en cada nivel temporal $j+1$.

Si en la primera ecuación ($i=n-j$) del sistema (11) se incorpora la condición de borde (8):

$$U_{n-j,j} = U_{n-j-1,j+1} = 1 \quad (13)$$

queda:

$$\begin{aligned} (1+2p_j)U_{n-j,j+1} - [1+1/(n-j)]p_j U_{n-j+1,j+1} &= \\ = 1 + [1-1/(n-j)]p_j & \end{aligned} \quad (14)$$

Si en la última ecuación ($i=n$) del sistema (11) se incorpora la condición de borde (7), discretizada en forma centrada:

$$\frac{U_{n-1,j+1} - U_{n+1,j+1}}{2\Delta R} = Bi U_{n,j+1} \quad (15)$$

queda:

$$-2p_j U_{n-1,j+1} + [1+2p_j(1+Bi/n+Bi/n^2)]U_{n,j+1} = U_{n,j} \quad (16)$$

El sistema de ecuaciones algebraicas (11), (14) y (16) es tridiagonal y se resuelve fácilmente con el algoritmo de eliminación de Gauss [18] para un dado valor de p_j . Este parámetro se determina haciendo uso de la ec. (9), discretizada en forma lineal descentrada:

$$\frac{U_{n-j-1,j+1} - U_{n-j,j+1}}{\Delta R} = \frac{\Delta R}{Ste \Delta Fo_j} \quad (17)$$

la cual, combinada con las ecs. (12) y (13), queda:

$$p_j = \frac{1}{Ste (1 - U_{n-j,j+1})} \quad (18)$$

El esquema predictor-corrector utilizado es:

$$p_j^* = \alpha p_{j-1} \quad (\text{paso predictor}) \quad (19)$$

$$p_j = \beta p_j^* + (1-\beta)p_{j-1} \quad (\text{paso corrector}) \quad (20)$$

donde α y β son parámetros de ponderación ($0 < \alpha, \beta < 1$).

Como criterio de convergencia se adoptó:

$$|1 - p_j/p_j^*| < 10^{-5} \quad (21)$$

Para el cálculo del primer intervalo temporal ΔF_0 y de p_0 se hace se combinan las ecs. (11), (13) y (15), haciendo $i=n$ y $j=0$ obteniéndose una ecuación cuadrática en p_0 cuya raíz positiva es:

$$P_0 = \frac{1}{2} + \frac{2}{Ste Bi n} + \sqrt{\left(\frac{1}{4} + \frac{2^2}{Ste^2 Bi^2 n^2} + \frac{n}{Ste Bi} \right)} \quad (22)$$

Los cálculos fueron efectuados en una computadora IBM 370/158, empleándose lenguaje Fortran IV y precisión simple.

RESULTADOS NUMERICOS:

Eligiendo adecuadamente los parámetros de ponderación α y β se alcanza la precisión requerida en 2-3 iteraciones para $\Delta R=0,01$.

En la fig. 3 se presenta la distribución espacial de temperaturas $U(R)$ para $Ste=1$, $Bi=1$ y distintas posiciones de la interfaz S-L. Puede apreciarse que el gradiente térmico en la interfaz S-L y, consecuentemente, la velocidad de la misma tienden a infinito cuando el frente de solidificación se aproxima al centro de la esfera.

En la fig. 4 se muestra la cinética de la interfaz $F_0(S)$ para enfriamiento ideal ($Bi=10^3$), diferentes Ste , y su confrontación con la solución analítica aproximada de Pedroso y Domoto [9], particularmente buena para números de Stefan bajos. Nótese que la velocidad tiende a infinito al comienzo y al final de la solidificación.

En la fig. 5 se grafica la cinética de la interfaz $F_0(S)$ para enfriamiento newtoniano ($Bi=10^{-2}$), diferentes Ste , y su confrontación con la solución analítica asintótica de Szekely y Fisher [8].

Las figs. 6 y 7 son las distribuciones de temperaturas cuando se completa la solidificación de la esfera, para $Ste=1$ y distintos Bi , y para $Bi=1$ y distintos Ste , resp.

APLICACION DEL MODELO A LA OBTENCION DE ESFERAS METALICAS OBTENIDAS POR ATOMIZACION CON GAS

El modelo numérico ha sido aplicado a la atomización de Al, Cu, Fe y Ni, en argón, calculándose tiempo total de solidificación en función de la velocidad relativa partícula-gas para diámetros de partículas $2r_0=100 \mu m$ (fig. 8).

Los valores de la propiedades físicas de los metales y del gas atomizante fueron extraídas de la ref. [19].

Para la estimación del rango de valores del coeficiente h de interés práctico se utilizó la relación empírica [20]:

$$Nu = 0.622 Re^{1/2} Pr^{1/3} \quad (23)$$

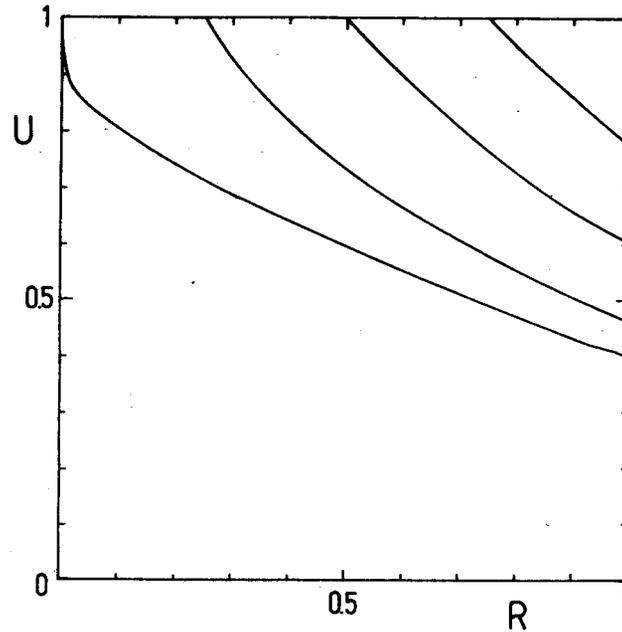


Fig. 3: Perfil térmico para $Ste=1$, $Bi=1$ y diferentes posiciones de la interfaz $S=0,75$; $0,5$; $0,25$ y 0 .

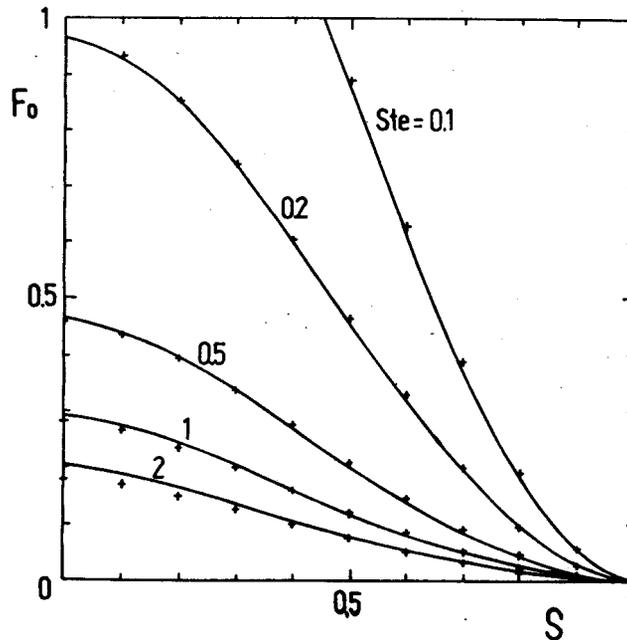


Fig. 4: Cinética de la interfaz para enfriamiento ideal y diferentes Ste :
+++ solución numérica ($Bi=10^3$),
— solución analítica aproximada de Pedroso y Domoto [9].

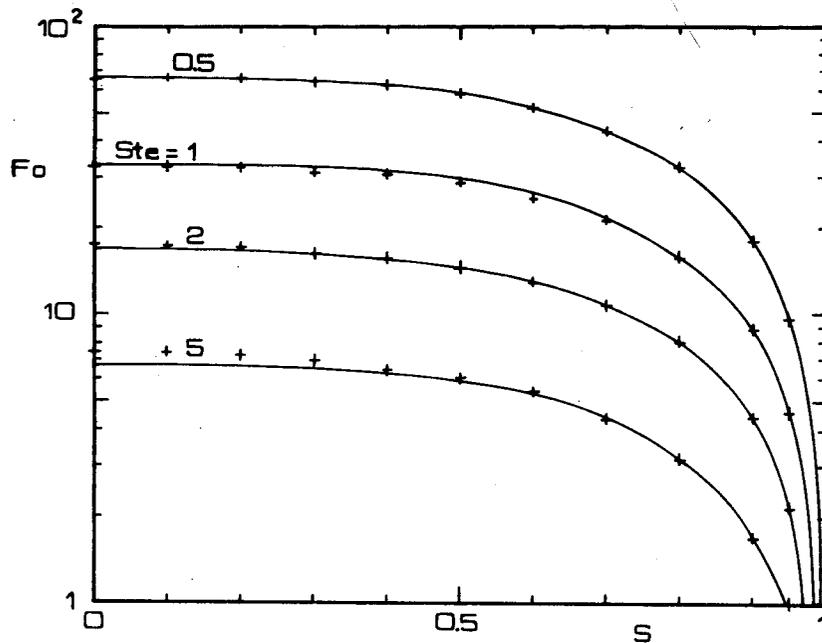


Fig. 5: Cinética de la interfaz para enfriamiento newtoniano y diferentes Ste:
+++ solución numérica ($Bi=10^{-2}$),
— solución analítica asintótica de Szekely y Fisher [8].

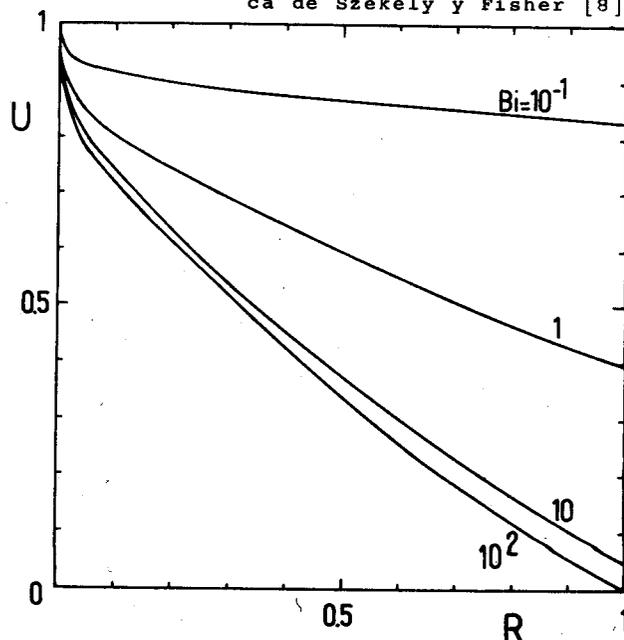


Fig. 6: Campo térmico al completar la solidificación de la esfera ($S=0$) para $Ste=1$ y diferentes Bi .

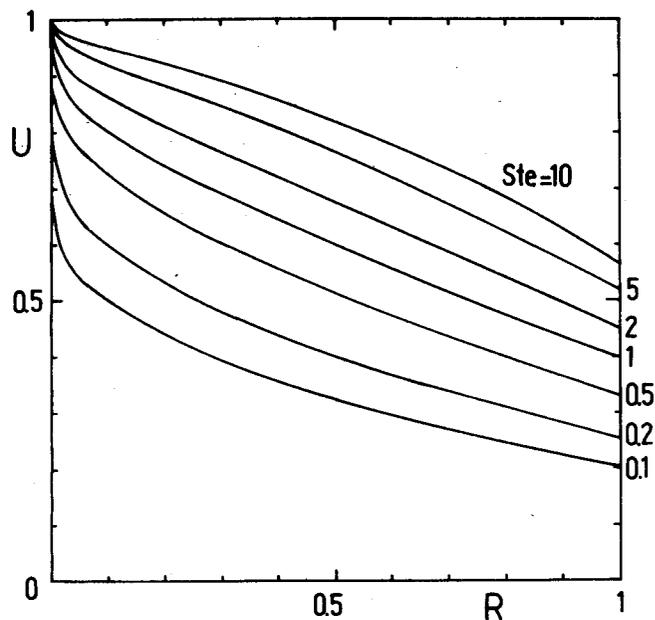


Fig. 7: Campo térmico al completar la solidificación de la esfera ($S=0$) para $Bi=1$ y diferentes Ste .

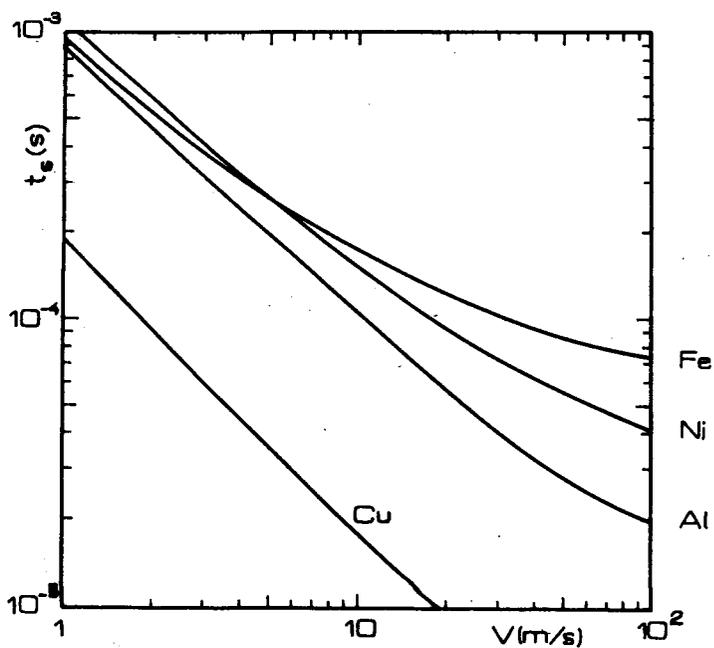


Fig. 8: Tiempos de solidificación total en función de la velocidad relativa partícula-gas, para atomización de diferentes metales en argón y diámetros de partícula $2r_0=100 \mu\text{m}$.

DISCUSION

El modelo numérico resultó satisfactorio excepto para números de Biot bajos ($Bi \ll 10^{-2}$) donde el método no converge. Esta dificultad es debida a que, para estos valores, la velocidad de la interfase tiende a cero al comienzo de la solidificación y el intervalo temporal Δt_0 se hace extremadamente grande. Una manera de superarla es mediante el uso de una malla variable con paso temporal fijo y paso espacial variable [15], si bien esta alternativa fallará cuando la velocidad de la interfaz S-L tienda a infinito en el centro de la esfera. De cualquier manera, para este rango de números de Biot las soluciones analíticas asintóticas son aplicables.

Los resultados obtenidos en la aplicación del modelo a la atomización de metales deben considerarse preliminares debido a que el sobrecalentamiento del líquido es una variable importante que no puede despreciarse. La resolución del problema de Stefan a dos fases se hace imperativo si se desea una simulación realista del proceso.

CONCLUSIONES

El modelo numérico propuesto para su aplicación a la solidificación de partículas esféricas de metales puros obtenidas por atomización con gas resulta apropiado para régimen de enfriamiento intermedio, debiendo utilizarse las expresiones analíticas asintóticas disponibles para régimen newtoniano.

SIMBOLOGIA

Parámetros dimensionales

a	Difusividad térmica del sólido (m^2/seg)
c	Calor específico del sólido ($J/Kg^\circ K$)
c _g	Calor específico del gas a presión constante ($J/Kg^\circ K$)
h	Conductancia térmica superficial esfera-refrigerante ($J/m^2^\circ K \text{ seg}$)
k	Conductividad térmica del sólido ($J/m \text{ seg}^\circ K$)
k _g	Conductividad térmica del gas ($J/m \text{ seg}^\circ K$)
L	Calor latente de solidificación del metal (J/Kg)
r	Coordenada radial (m)
s	Posición de la interfase sólido-líquido (m)
t	Tiempo (seg)
T	Temperatura ($^\circ K$)
T _f	Temperatura de fusión del metal ($^\circ K$)
T _g	Temperatura del gas ($^\circ K$)
v	Velocidad de la interfase sólido-líquido (m/seg)
V	Velocidad relativa esfera-gas (m/seg)
ρ	Densidad del sólido (Kg/m^3)
ρ _g	Densidad del gas (Kg/m^3)
μ	Viscosidad del gas ($Kg/m \text{ seg}$)

Parámetros adimensionales

Bi	Número de Biot ($=hr_o/k$)
Fo	Número de Fourier ($=at/r_o^2$)
Nu	Número de Nusselt ($=hr_o/k_g$)
p	Parámetro que surge de la discretización de la ecuación parabólica (6) ($=\Delta Fo/(\Delta R)^2$)
Pe	Número de Péclet ($=vr_o/a$)
Pr	Número de Prandtl ($=c_g \mu/k_g$)
R	Coordenada radial ($=r/r_o$)
Re	Número de Reynolds ($=Vr_o \rho_g/\mu$)
S	Posición de la interfase ($=s/r_o$)
Ste	Número de Stefan ($=c(T_f - T_g)/L$)
U	Temperatura ($=(T - T_g)/(T_f - T_g)$)
α	Parámetro de ponderación en la ec. (19) ($0 < \alpha < 1$)
β	Parámetro de ponderación en la ec. (20) ($0 < \beta < 1$)

REFERENCIAS

- [1] "Atomization", en "Metals Handbook", 9a ed., Vol. 7 ("Powder Metallurgy"), American Society for Metals, Ohio, 1983, págs. 25-51.
- [2] Mehrabian, R., "Rapid solidification", Intern. Metals Reviews, Vol. 27, No.4, 1982, págs. 185-208.
- [3] Grant, N.J., "Rapid solidification of metallic particulates", J. of Metals, Enero 1983, págs. 20-27.
- [4] Savage, S.J. y Froes, F.H., "Production of rapidly solidified metals and alloys", J. of Metals, Abril 1984, págs. 20-33.
- [5] Mehrabian, R.; Hsu, S.C.; Levi, C.G. y Kou, S., "Heat flow limitations in rapid solidification processing", Advanced in Metal Processing, 1981, págs. 13-43.
- [6] Crank, J., "The mathematics of diffusion", 2a ed., Oxford University Press, Londres, 1975, pág. 96.
- [7] Szekely, J. y Fisher, R.J., "The transient heating or cooling of spheres by thermal radiation at the bounding surface", Trans. AIME, Vol. 242, 1968, págs. 612-618.
- [8] Szekely, J. y Fisher, R.J., "On the solidification of metal spheres due to thermal radiation at the bounding surface", Metall. Trans., Vol. 1, 1970, págs. 1480-1482.
- [9] Pedroso, R.I. y Domoto, G.A., "Perturbation solutions for spherical solidification of saturated liquids", Trans. ASME, Vol. 95C, 1973, págs. 42-46.
- [10] Castro, J.I.; Robetta, M.L. y Saravia, L.R., "Acumulación por cambio de fase de energía térmica de origen solar. Conducción del calor en elementos de cambio de fase de varias geometrías", Actas de la 4a Reunión de Trabajo de Energía Solar, Asociación Argentina de Energía Solar, Salta, 1978, págs. 193-211.
- [11] Levi, C.G. y Mehrabian, R., "Heat flow in atomized metal droplets", Metall. Trans. B, Vol. 11B, 1980, págs. 21-27.
- [12] Shamsundar, N. y Sparrow, E.M., "Analysis of multi-dimensional conduction phase change via the enthalpy model", J. Heat Transfer, Vol. 95C, 1975, págs. 333-340.
- [13] Gupta, R.S. y Kumar, D., "A modified variable time step method for the one-dimensional Stefan problem", Comp. Meth. Appl. Mech. Eng., Vol. 23, 1980, págs. 101-109.
- [14] Caracino, A.; Marshall, G. y Moyano, E.A., "Sobre la solución numérica del problema de Stefan unidimensional", CNEA-NT 22/81, Comisión Nacional de Energía Atómica, Argentina, 1981.

- [15] Marshall, G., "Un método de seguimiento de la interfase para problemas unidimensionales de frontera móvil", CNEA-NT 22/83, Comisión Nacional de Energía Atómica, Argentina, 1983.
- [16] Moyano, E.A., Balzaretto, D.E. y Vicente, E.E., "Resolución numérica de un problema de Stefan: Solidificación unidireccional de metales puros", CNEA-NT 5/85, PMTM I-10, Comisión Nacional de Energía Atómica, Argentina, 1985.
- [17] Tarzia, D.A., "Una revisión sobre problemas de frontera móvil y libre para la ecuación del calor. El problema de Stefan", Mathematicae Notae, Año XXIV, 1981-1982, págs. 147-241.
- [18] Carnahan, B., Luther, H.A. y Wilkes, J.O., "Applied Numerical Methods", John Willey & Sons, New York, 1969, págs. 270-272 y 441-442.
- [19] "ASM Metals Reference Book", 2a. ed., American Society for Metals, Ohio, 1983, págs. 84-89.
- [20] Nichiporenko, O.S., Tsipunov, A.G. y Ternovoi, Yu.F., "Analysis of the particle shape formation process in the centrifugal atomization of a melt jet", Sov. Powder Metall. Ceram., Vol. 23 (1), 1984, págs. 1-6.