

Weryfikacja modeli heterogenicznego zarodkowania ziaren pierwotnych w stopie Al-5Cu

M. Górny^a, G. Sikora^{a*}

^a AGH Akademia Górniczo-Hutnicza im. Stanisława Staszica w Krakowie, Wydział Odlewnictwa, Katedra Inżynierii Stopów i Kompozytów Odlewanych, ul. Reymonta 23, 30-059 Kraków, Polska

*Kontakt korespondencyjny: e-mail: gsikora@agh.edu.pl

Otrzymano 20.11.2014; zaakceptowano do druku 12.12.2014

Streszczenie

Gęstość ziaren pierwotnych N_v po krystalizacji zależy od maksymalnego przechłodzenia ΔT ciekłego stopu. Zależność ta może być oparta o różne rozkłady statystyczne: Gaussa, Weibulla, lognormalny oraz zależy od charakterystyki heterogenicznych miejsc zarodkowania oraz ich aktywnej liczby obecnej w ciekłym stopie odlewniczym. Celem niniejszej pracy jest skonfrontowanie wyników doświadczalnych z istniejącymi już modelami Oldfielda, Frasia, lognormalnego oraz wyznaczenie wartości parametrów zarodkowania tych modeli, które są charakterystyczne dla badanego stopu Al-5Cu. Zweryfikowano modele zarodkowania ziaren fazy pierwotnej $\alpha(\text{Al})$ w stopie Al-5Cu w stanie wyjściowym oraz modyfikowanym. Z przeprowadzonej analizy wynika, że model Oldfielda wykazuje dobrą zgodność z wynikami doświadczalnymi, ale tylko dla stanu wyjściowego, podczas gdy modele lognormalny oraz Frasia (oparty na rozkładzie statystycznym Weibulla) są równoważne pod względem dobrego odwzorowania wyników doświadczalnych dla zarodkowania ziaren fazy pierwotnej $\alpha(\text{Al})$ w stopie Al-5Cu zarówno dla stanu wyjściowego jak i modyfikowanego.

Słowa kluczowe: zarodkowanie heterogeniczne, modele zarodkowania, gęstość ziaren pierwotnych, przechłodzenie ciekłego stopu, rozkład statystyczny

1. Wprowadzenie

Gęstość ziaren pierwotnych w stopach aluminium-miedź jest jednym z głównych czynników wpływających na jakość otrzymanych odlewów. Na ostateczną gęstość ziaren pierwotnych $\alpha(\text{Al})$ mają znaczący wpływ takie czynniki jak [1-4]: skład chemiczny stopu, zabieg modyfikowania, szybkość stygnięcia, żużel i atmosfera pieca, materiał formy odlewniczej, temperatura oraz czas przegrzania ciekłego metalu. Jednak w praktyce największy wpływ na liczbę ziaren pierwotnych w stopach aluminium ma zabieg modyfikowania [5-6].

Liczbę ziaren można utożsamiać z liczbą aktywnych zarodków i w związku z tym reprezentuje ona potencjał zarodkowania. Znajomość wpływu czynników technologicznych na gęstość ziaren jest kluczowa, gdyż determinuje ona właściwości mechaniczne stopów aluminium [7], leżność [8], a także odporność na pękanie w wysokich temperaturach [9].

Jeżeli rozważamy gęstość ziaren pierwotnych w obrębie jednego odlewu to jest ona funkcją maksymalnego przechłodzenia ciekłego stopu [10-11].

Do tej pory najczęściej stosowanym modelem zarodkowania jest potęgowy model Oldfielda, który pomimo braku oczywistego sensu fizycznego jest szeroko używany w oprogramowaniu symulującym

procesy krystalizacji i krzepnięcia w takich programach jak MAGMASOFT, czy ProCAST/QuickCAST [12-13].

Celem niniejszej pracy jest skonfrontowanie wyników doświadczalnych opublikowanych w pracy [14] z modelami Oldfielda, Frasia oraz lognormalnego oraz wyznaczenie wartości parametrów zarodkowania tych modeli, które są charakterystyczne dla badanego stopu Al-5Cu.

2. Część eksperymentalna

Gęstość ziaren pierwotnych $N_V(\Delta T)$ można ogólnie opisać za pomocą następującego równania:

$$N_V(\Delta T) = \lambda \cdot \int_0^{\Delta T} n(x) dx, \quad [cm^{-3}], \quad (1)$$

gdzie: $n(\Delta T)$ [-] jest funkcją rozkładu zmian gęstości ziaren w zależności od przechłodzenia ciekłego stopu i opisuje kinetykę procesu zarodkowania, λ [cm^{-3}] jest wartością stałą. Funkcja $N_V(\Delta T)$ jest dystrybuantą funkcji $n(\Delta T)$.

2.1. Model Oldfielda

Potęgowy model Oldfielda można opisać za pomocą następującego równania:

$$N_V(\Delta T) = k \cdot \Delta T^m, \quad (2)$$

gdzie: k [$^{\circ}C^{-m} \times cm^{-3}$] i m [-] są parametrami modelu wyznaczone w oparciu o dane doświadczalne, przy czym parametr k zależy od rodzaju stopu i od efektu zabiegu modyfikowania [15].

2.2. Model Frasia

Model Frasia zakłada, że rozkład wielkości podkładek do zarodkowania jest oparty o rozkład statystyczny Weibulla [16]. Funkcję rozkładu zmian gęstości ziaren w zależności od przechłodzenia ciekłego stopu można zapisać następująco [10]:

$$n(\Delta T) = \frac{b}{(\Delta T)^2} \cdot \exp\left(-\frac{b}{\Delta T}\right). \quad (3)$$

Maksimum zależności (3) występuje dla argumentu $\Delta T = b/2$. Funkcję gęstości ziaren w zależności od przechłodzenia ciekłego stopu można zapisać następująco:

$$N_V(\Delta T) = \lambda \cdot \exp\left(-\frac{b}{\Delta T}\right), \quad (4)$$

gdzie: b [$^{\circ}C$] i λ [cm^{-3}] są parametrami modelu wyznaczone w oparciu o dane doświadczalne, przy czym λ jest liczbą wszystkich zarodków obecnych w ciekłym stopie, b jest współczynnikiem zarodkowania, który można zdefiniować następująco:

$$b = \frac{4 \cdot \sigma_{c,z}}{\Delta S \cdot d_A}, \quad (5)$$

gdzie: $\sigma_{c,z}$ jest napięciem powierzchniowym na granicy ciecz-zarodek, [$J \times cm^{-2}$], ΔS jest zmianą entropii podczas procesu krystalizacji, [$J \times cm^{-3} \times ^{\circ}C^{-1}$], d_A jest średnią wielkością zarodka krystalizacji, [cm].

2.3. Model lognormalny

Model lognormalny [10] z powodzeniem zastępuje model Thèveza, który jest oparty na rozkładzie Gaussa. Zależność $n(\Delta T)$ dla modelu lognormalnego ma następującą postać:

$$n(\Delta T) = \frac{1}{\Delta T \cdot \sigma \cdot \sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot \exp\left[-\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\ln(\Delta T) - m}{\sigma}\right)^2\right], \quad (6)$$

gdzie: m jest odpowiednikiem wartości średniej (wartości oczekiwanej), σ jest odchyleniem standardowym.

Maksimum zależności (6) występuje dla argumentu $\Delta T = \exp(m - \sigma^2)$. Funkcję gęstości ziaren w zależności od przechłodzenia ciekłego stopu można zapisać następująco:

$$N_V(\Delta T) = \frac{\lambda}{\sigma \cdot \sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot \int_0^{\Delta T} \frac{1}{x} \cdot \exp\left[-\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\ln x - m}{\sigma}\right)^2\right] dx. \quad (7)$$

Równanie (7) w prostszej formie można zapisać następująco:

$$N_V(\Delta T) = \lambda \cdot \Phi\left(\frac{\ln(\Delta T) - m}{\sigma}\right), \quad (8)$$

gdzie: λ [cm^{-3}], m [-], σ [-] są parametrami modelu wyznaczone w oparciu o dane doświadczalne. Φ jest tabelaryzowaną funkcją Laplacea, której odpowiednikiem w oprogramowaniu może być przekształcona funkcja błędu erf(x) do postaci:

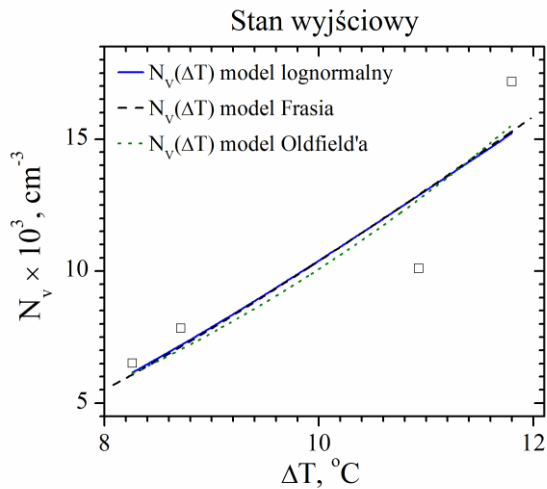
$$\Phi(x) = \frac{1}{\sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot \int_{-\infty}^x \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) dx. \quad (9)$$

3. Analiza uzyskanych wyników

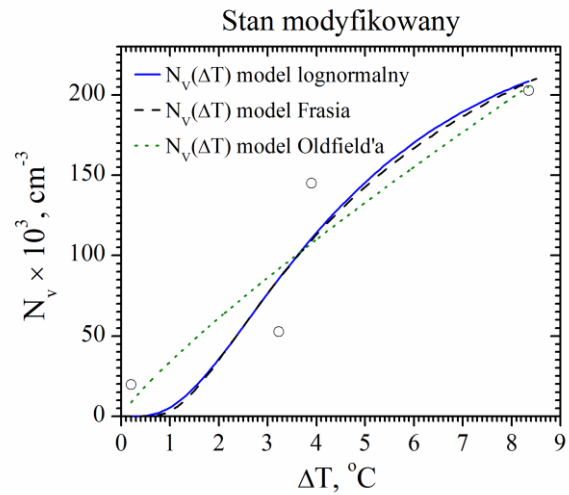
Na rysunkach 1 i 2 pokazano wyznaczone eksperymentalnie gęstości ziaren fazy pierwotnej $\alpha(Al)$ wraz z krzywymi opracowanymi na podstawie opisanych wcześniej modeli zarodkowania. Krzywe dopasowano przy pomocy programu OriginPro w wersji 8.1.

W przypadku stanu wyjściowego stopu zastosowane modele w zasadzie się pokrywają i wykazują dobrą zgodność z danymi doświadczalnymi. W przypadku stanu modyfikowanego dopasowany model lognormalny w zasadzie pokrywa się z modelem Frasia, natomiast model Oldfielda wykazuje inny przebieg. W tabeli 1 zestawiono wartości dopasowanych parametrów wybranych

modeli do danych doświadczalnych wraz odpowiednimi współczynnikami determinacji.



Rys. 1. Porównanie zależności $N_v(\Delta T)$ dla modeli: lognormalnego, Frasia i Oldfield'a z danymi doświadczalnymi dla stanu wyjściowego (niemodyfikowanego)



Rys. 2. Porównanie zależności $N_v(\Delta T)$ dla modeli: lognormalnego, Frasia i Oldfield'a z danymi doświadczalnymi dla stanu modyfikowanego

Tabela 1. Wartości dopasowanych parametrów modeli do danych doświadczalnych wraz odpowiednimi współczynnikami determinacji

	model lognormalny					model Frasia				model Oldfielda			
	λ [cm ⁻³]	m	σ	R ²	R ² _{adj.}	λ [cm ⁻³]	b [°C]	R ²	R ² _{adj.}	k [°C ^{-m} ×cm ⁻³]	m	R ²	R ² _{adj.}
Stan wyjściowy	53217	2,787	0,57	0,82	0,47	131587	25,39	0,82	0,75	24,7	2,61	0,85	0,77
Stan modyfikowany	261214	1,503	0,74	0,87	0,62	364536	4,69	0,87	0,81	33999	0,85	0,85	0,78

gdzie:

R² – współczynnik determinacji
R²_{adj.} – skorygowany współczynnik determinacji

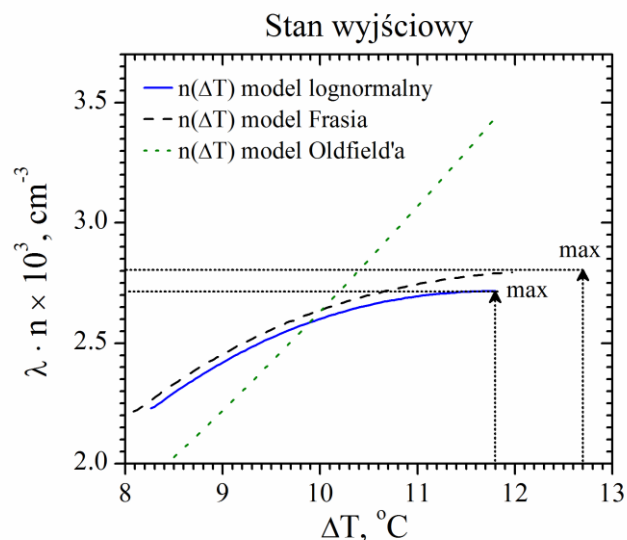
Zamieszczone w tabeli 1 wartości skorygowanego współczynnika determinacji (R²_{adj.}) uwzględniają złożoność danego modelu, czyli tzw. liczbę stopni swobody (liczbę dopasowywanych parametrów w modelu), a nie tylko jakość dopasowania jak to się dzieje w przypadku współczynnika determinacji (R²).

Dla stanu wyjściowego jakość dopasowania dla wszystkich zastosowanych modeli jest dobra ponieważ wartości R² zawierają się w zakresie od 0,82 do 0,85. Jeżeli uwzględnimy złożoność zastosowanych modeli to zdecydowanie najgorszy jest model lognormalny, dla którego wartość skorygowanego współczynnika determinacji wynosi 0,47.

W przypadku stanu modyfikowanego jakość dopasowania dla wszystkich modeli jest bardzo dobra ponieważ wartości R² zawierają się w zakresie od 0,85 do 0,87. W przypadku złożoności zastosowanych modeli najlepszym zastosowanym modelem jest model Frasia (R²_{adj.} = 0,81).

Dopasowany model Oldfielda dla dużych wartości przechłodzenia dąży do nieskończoności natomiast pozostałe modele dążą do wartości λ .

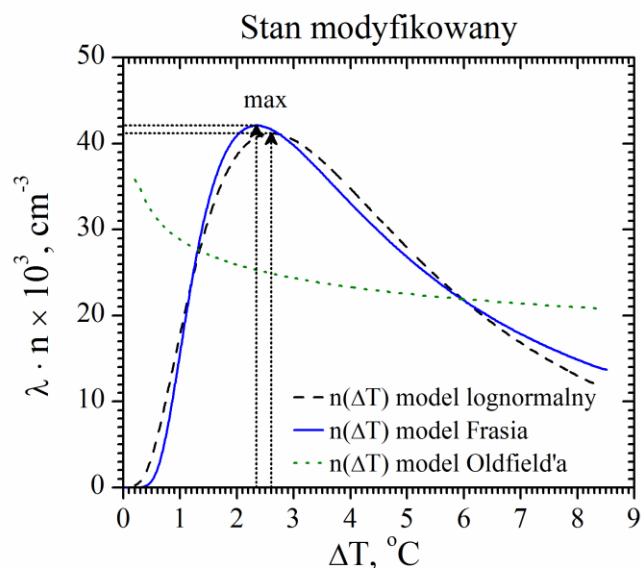
W celu sprawdzenia poprawności fizycznej zastosowanych modeli wyznaczono pochodną dopasowanych funkcji $N_v(\Delta T)$, które przedstawiono na rysunkach 3 i 4.



Rys. 3. Porównanie funkcji rozkładu zmiany gęstości ziaren dla modeli: lognormalnego, Frasia i Oldfielda wyznaczonych na podstawie danych doświadczalnych dla stanu wyjściowego (niemodyfikowanego)

Na podstawie wyznaczonych zależności $n(\Delta T)$ można zauważyć, że model Oldfielda nie posiada interpretacji fizycznej. Natomiast model lognormalny i Frasia wykazują charakterystyczne maksimum na funkcji $n(\Delta T)$ opisującej zmianę gęstości ziaren pierwotnych w zależności od przechłodzenia ciekłego stopu. Szczególnie dobrze jest to widoczne dla stanu modyfikowanego

stopu na wykresie 4. W przypadku stanu wyjściowego maksima te występują poza zakresem danych doświadczalnych i zostały wyznaczone na podstawie parametrów dopasowania modeli na podstawie równań (3) i (6). W tabeli 2 podano wyznaczone wartości współrzędnych punktów w których występują maksima dla funkcji $n(\Delta T)$.



Rys. 4. Porównanie funkcji rozkładu zmiany gęstości ziaren dla modeli: lognormalnego, Frasia i Oldfielda wyznaczonych na podstawie danych doświadczalnych dla stanu modyfikowanego

Tabela 2. Wartości współrzędnych punktów w których występują maksima dla funkcji $n(\Delta T)$

		model lognormalny	model Frasia
Stan wyjściowy	ΔT [°C]	11,8	12,7
	$n(\Delta T)$	0,0510	0,0213
	$\lambda \cdot n(\Delta T)$ [cm ⁻³]	2715	2805
Stan modyfikowany	ΔT [°C]	2,6	2,3
	$n(\Delta T)$	0,1577	0,1151
	$\lambda \cdot n(\Delta T)$ [cm ⁻³]	41194	42076

W stanie wyjściowym obserwuje się znaczne przesunięcie położenia maksimum funkcji $n(\Delta T)$ opisującej rozkład zmiany gęstości ziaren pierwotnych w zależności od przechłodzenia ciekłego stopu w stosunku do stanu modyfikowanego.

Maksimum funkcji $n(\Delta T)$ w obu stanach (wyjściowym i modyfikowanym) wyznaczone na podstawie modelu lognormalnego wykazuje przesunięcie w stronę mniejszych wartości przechłodzenia ciekłego stopu w stosunku do modelu Frasia.

4. Wnioski

Skonfrontowano wyniki doświadczalne z istniejącymi już modelami Oldfielda, Frasia oraz lognormalnego oraz wyznaczono wartości parametrów zarodkowania dla tych modeli, które są charakterystyczne dla badanego stopu Al-5Cu. Zweryfikowano modele dla zarodkowania fazy pierwotnej $\alpha(\text{Al})$ w stopie Al-5Cu w stanie wyjściowym oraz modyfikowanym. Model lognormalny oraz Frasia, oparty na rozkładzie statystycznym Weibulla, są równoważne pod względem dobrego odwzorowania wyników doświadczalnych dla zarodkowania fazy pierwotnej $\alpha(\text{Al})$ w stopie Al-5Cu. Jednak mając do wyboru kilka modeli, o podobnej jakości dopasowania, na potrzeby konstrukcji prognoz powinniśmy wybrać model prostszy. Dopasowanie zbyt złożonego modelu do małej ilości danych (ang. overfitting) może mieć bardzo niekorzystny wpływ na dokładność prognoz.

Literatura

- [1] Murty, B.S., Kori S. A., Chakraborty M. (2002). Grain refinement of aluminum and its alloys by heterogeneous nucleation and alloying. *International Materials Review*. 47(1), 3-29.
- [2] Spittle, J. A. (2006). Grain refinement in shape casting of aluminum alloys. *International Journal of Cast Metals Research*. 19, 210-222.
- [3] Chen, R., Shi, Y., Xu, Q., Liu, B. (2014). Effect of cooling rate on solidification parameters and microstructure of Al-7Si-0.3Mg-0.15Fe alloy. *Transactions of the Nonferrous Metals Society of China*. 24, 1645-1652.
- [4] Górny, M., Sikora G. (2013). Wpływ szybkości stygnięcia na liczbę ziaren pierwotnych stopu Al-5Cu. *Archives of Foundry Engineering*. 13Sp.(3), 25-30.
- [5] HU, X., Ai, F., Yan, H. (2012). Influence of pouring temperature and cooling rate on microstructure and mechanical properties of casting Al-Si-Cu aluminum alloy. *Acta Metallurgica*. 25, 272-278.
- [6] Grosselle, F., Timelli, G., Bonollo, F., Tiziani, A., Della Corte, E. (2009). Correlation between microstructure and mechanical properties of Al-Si cast alloy. *Metallurgia Italiana*. 101, 25-32.
- [7] Cáceres, C. H. & Wang, Q. (1996). Dendrite Cell Size and Ductility of Al-Si-Mg Casting Alloys: Spear and Gardner Revisited. *International Journal of Cast Metals Research*. 9, 157-162.
- [8] Easton, M. A., StJohn, D. H. (2000). The Effect of Grain Refinement on the Formation of Casting Defects in Alloy 356 Castings. *International Journal of Cast Metals Research*. 12, 393-408.
- [9] Lin, S., Aliravci, C. & Pekguleryuz, M. O. (2007). Hot-Tear susceptibility of aluminum wrought alloys and the effect of grain refining. *Metallurgical and Materials Transactions A*. 38, 1056-1068.
- [10] Fraś, E., Wienczek, K., Burbelko, A. A., Górny, M. (2006). The Application of Some Probability Density Functions on Heterogeneous Nucleation. *Materials Science Forum*. 508, 425-430.
- [11] Lelito, J., Żak, P., Suchy, J.S., Krajewski, W., Greer, A. L., Darlak, P. (2010). Experimental determination of grain density function of AZ91/SiC composite with different mass fraction of SiC and undercoolings using heterogeneous nucleation model. *China Foundry*. 8(1), 101-106.
- [12] Fraś, E., Wienczek, K., Górny, M., Lopez, H. L., Olejnik, E. (2013). Equiaxed Grain Count in Aluminum Alloy Castings: Theoretical Background and Experimental Verification. *Metallurgical and Materials Transactions A*. 44A, 5788-5795. DOI: 10.1007/s11661-013-1919-0.
- [13] Fraś, E., Wienczek, K., Górny, M., Lopez, H. L., Olejnik, E. (2014). Grain count in castings: theoretical background and experimental verification. *International Journal of Cast Metals Research*. 27(1), 15-25.
- [14] Górny, M., Sikora, G. (2014). Effect of Modification and Cooling Rate on Primary Grain in Al-Cu Alloy. *Archives of Foundry Engineering*. 14(3), 21-24.
- [15] Stefanescu, D. M. (2009) *Science and engineering of casting solidification* (2nd ed.). New York: Springer.
- [16] Fraś, E., Wienczek, K., Górny, M., Lopez, H. (2003). Theoretical model for heterogeneous nucleation of grains during solidification. *Materials Science and Technology*. 19, 1653-1660.

Verification of Models of Heterogeneous Nucleation of Primary Grains in Al-5Cu Alloy

The grain density N_v after solidification is a function of maximum undercooling of a liquid alloy ΔT . This relationship may be based on the different statistical distributions: Gaussian, Weibull, Lognormal and depends on the characteristics of heterogeneous nucleation sites present in the liquid alloy. The purpose of this work was a compare the experimental data with the models: Oldfield, Fras and Lognormal and determination the nucleation parameters of these models, which are characteristic for the investigated alloy Al-5Cu. The models of nucleation of primary grains $\alpha(\text{Al})$ in the alloy Al-5Cu was verified for two physicochemical state of liquid metal: base and refined. The analysis shows that the model Oldfield has a good compatibility with experimental results, but only for the base alloy. The lognormal and Fras (based on Weibull's distribution) models are equivalent as regards a good representation of the experimental results of the nucleation of primary grains $\alpha(\text{Al})$ in the alloy Al-5Cu for both physicochemical state.