

Experimentation and Modeling
of Grain Nucleation and Solidification of Aluminum Alloys
in Absence and Presence of Shear

The Faculty of Georesources and Materials Engineering at
RWTH Aachen University

Submitted in partial fulfillment of the requirements of the academic degree of

Doctor of Engineering

by

M.Sc. Mahmoud Abdalla Ahmadein

from Kafr-Elsheikh, Egypt

Approved by: Univ.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bührig-Polaczek

Univ.-Prof. Dr. rer. nat. habil. Andreas Ludwig

Date of the oral examination: 28.05.2009

**Experimentieren und Modellieren der Keimbildung
von Körnern und der Erstarrung in Aluminium Legierungen
in Ab- und Anwesenheit von Scherung**

Von der Fakultät für Georessourcen und Materialtechnik der
Rheinisch -Westfälischen Technischen Hochschule Aachen

zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Ingenieurwissenschaften

genehmigte Dissertation

vorgelegt von
M.Sc. Mahmoud Abdalla Ahmadein
aus Kafr-Elsheikh, Ägypten

Berichter: Univ.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bührig-Polaczek

Univ.-Prof. Dr. rer. nat. habil. Andreas Ludwig

Tag der mündlichen Prüfung: 28.05.2009

Gießerei-Institut: Forschung, Entwicklung, Ergebnisse

Band 58

Mahmoud Ahmadein

**Experimentation and Modeling of Grain Nucleation
and Solidification of Aluminum Alloys
in Absence and Presence of Shear**

Shaker Verlag
Aachen 2009

Bibliographic information published by the Deutsche Nationalbibliothek

The Deutsche Nationalbibliothek lists this publication in the Deutsche Nationalbibliografie; detailed bibliographic data are available in the Internet at <http://dnb.d-nb.de>.

Zugl.: D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2009)

Copyright Shaker Verlag 2009

All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior permission of the publishers.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8322-8259-2

ISSN 1435-6198

Shaker Verlag GmbH • P.O. BOX 101818 • D-52018 Aachen

Phone: 0049/2407/9596-0 • Telefax: 0049/2407/9596-9

Internet: www.shaker.de • e-mail: info@shaker.de

*Dedicated to
my mother and the memory of my father*

Acknowledgement

«The praise to Allah, Who hath guided us to this. We could not truly have been led aright if Allah had not guided us. »

First and foremost, I would like to express my gratitude to my thesis advisor, Prof. Andreas Bührig-Polaczek, for his kind support especially at the finishing stage. I have discovered during his supervision period that the German word “Doktorvater” goes beyond the meaning “advisor”. In his dictionary it means in addition, to give the fatherhood emotions and the self-confidence to his students and staff. I express sincerely my especial thanks to Prof. Andreas Ludwig, University Leoben-Austria for accepting to revise this work and for spending his valuable time to come to Aachen to examine me.

I am grateful to my colleague Björn Pustal for his special care in the early years at Foundry Institute and his valuable discussions at the beginning of this work. I cannot forget to owe my great appreciations to my colleague Emir Subašić, the group leader, for his gentleness and spending his expensive time for the proof reading of my thesis.

I would like to thank all the staff of Foundry Institute, particularly Matthias Bünck for his help to accomplish the experiments of the cooling channel rheocaster and the team of metallographic and analytic laboratories and the cast-house of their technical assistance.

Great appreciation to Prof. Michael Modigell - director of the institute of Mechanical Process Engineering at RWTH-Aachen University for his helpful advices on the concept of rheology and to Lars Pape for his collaboration in accomplishing the Couette-rheometer experiments within the scope of the collaborative research project SFB-289 sponsored by the German Research Foundation (DFG).

I am owing to the Educational Mission of the Arab Republic of Egypt for the unbroken care and the financial support during the first 4 years of my stay in Germany.

I dedicate this dissertation to my mother for her continual encouragement and prayer and to the memory of my father who died during achieving this work. I would like to express my warmest gratitude to my beloved wife “Attiat” and my children; Marwa, Omar and Yousof for their patience, sacrifice and endless love.

Abstract

Grain nucleation is the first event in solidification process and it influences the final grain size and the mechanical properties of the cast and welded parts. Many authors modeled heterogeneous nucleation so far; however, grain nucleation in presence of shear received little interest. It was focused in this work on experimental and numerical treatment of the heterogeneous grain nucleation taking place during solidification of aluminum alloys under free- and shear-flow.

The statistical continuous nucleation model of Thevoz and Rappaz is adopted within a multi-phase flow and solidification simulation model (MeSES) coupled to a CFD-software to model grain nucleation in absence of shear. The grain density, n_0 , and the undercooling, ΔT , were correlated via Gaussian distribution function and three alloy-characteristic fitting parameters that: the total grain density, n_{\max} , the mean undercooling, ΔT_N , and the standard deviation of the undercooling, ΔT_σ .

An apparatus was constructed and equipped with a cooling system and 8 thermocouples to facilitate solidification at different cooling rates. Additionally, smaller samples were cast at extremely high cooling rates to obtain n_{\max} . The resulting ΔT and the corresponding grain densities for each of A356, grain refined AlCu4, and unrefined AlCu4 were plotted and the related error functions was generated to fit this data. From these error functions ΔT_N and ΔT_σ were deduced. After improvements in the existing code, e.g. synchronizing grain nucleation and solid formation events, the obtained nucleation parameters were used to reproduce the experiments numerically and to validate the used model. The resulting grain density and size exhibited good agreement.

A second benchmark experiment was conducted to investigate the influence of shear on grain formation during continuous cooling of A356 aluminum alloy in Couette rheometer. Samples were simultaneously cooled and sheared from the liquid state at different shear rates to about 15 vol. % solid and finally quenched in water. The development in alloy viscosity was recorded and the grain density, grain size, and shape factors at the shear gap were determined. The grain density under shear, n_s , was correlated to the shear rate, $\dot{\gamma}$, and the grain density in absence of shear, n_0 . From this correlation a source term, N_s , for grain multiplication under shear was deduced comprising also a undercooling source term, $N_{\Delta T}$. Additional source terms, N_{s-j} and N_{s-d} were assigned for shear jump and shear drop arising during process simulation. An Apparent viscosity calculated using different Non-Newtonian models was fitted to the measured viscosity. Zhang et al. and Hirai et al. viscosities showed the best fitting and were im-

plemented in MeSES. Since the latter was more comprehensive it was used together with the overall source term for nucleation, $N = N_{\Delta T} + N_s + N_{s-j} + N_{s-d}$, to conduct the simulations of Couette rheometer experiments. The results of solid fraction, grain density, and grain size exhibited good agreement. $N_{\Delta T}$ was relatively increased as $\dot{\gamma}$ increased due to the slight rise in cooling rate. Viscosity calculations were close to the measured ones at higher shear rates and were relatively higher at low shear rates. Further investigations for viscosity modeling are suggested because of its impact on flow and solidification simulation.

As a practical application, experiments and simulations of semi-solid feedstock production by cooling channel rheocaster were conducted. Minor process modifications were added to promote accurate boundary conditions. The impacts of velocity and temperature at inlet and the temperatures of channel and container on the final microstructure of the semi-solid slurry were investigated experimentally and numerically. Experiments reveal the role of channel in formation of a very fine mixture of rosette and solid fragments and the role of the container in improving the shape factor of the formed globules. Finer slurry can be produced by reducing inlet temperature and velocity and channel temperature to a certain extent. Simulations exhibited similar responses to the changes in boundary conditions. Additionally, simulations showed that reducing inlet and channel temperature can introduce a reverse effect on grain refinement when the slurry contains much solid that increases the viscosity and reduces the flow speed on the channel leading to abrupt decrease in cooling/shearing rate. Again, simulation results revealed the significance of the viscosity model used and emphasized the need for more consistent viscosity models that account for minor changes in shear rate and morphology. Great improvement in the calculated grain density was achieved by applying the integrated undercooling/shear dependent nucleation model in combination with Hirai viscosity model. Further improvements are prospected after grasping better understanding for shear contribution based on experimental evidence.

Zusammenfassung

Die Keimbildung von Körnern ist das erste Ereignis im Erstarrungsprozess und sie beeinflusst die letztendlichen Korngrößen und die mechanischen Eigenschaften von gegossenen und geschweißten Bauteilen. Viele Autoren modellierten bereits die heterogene Keimbildung, jedoch fand Keimbildung unter Anwesenheit von Scherung bisher wenig Interesse. In dieser Arbeit lag der Schwerpunkt auf der experimentellen und numerischen Behandlung der heterogenen

Keimbildung von Körnern, wie sie während der Erstarrung von Aluminiumlegierungen unter freier Strömung und Scherströmung auftritt.

Das statistische kontinuierliche Keimbildungsmodell von Thevoz und Rappaz wurde an ein mehrphasen Strömungs- und Erstarrungssimulationsmodell (MeSES) angebunden, das mit einer CFD-Software gekoppelt wurde, um die Keimbildung von Körnern in Abwesenheit von Scherung zu modellieren. Die Korndichte (n_0) und die Unterkühlung (ΔT) wurden mit Hilfe einer Gauß'schen Verteilungsfunktion korreliert, die drei legierungscharakteristische „Fitting“-Parameter enthält: Die Gesamtkorndichte (n_{max}), den Mittelwert der Unterkühlung (ΔT_N) und die Standardabweichung der Unterkühlung (ΔT_σ).

Es wurde eine Apparatur konstruiert, die mit einem Kühlsystem und 8 Thermoelementen ausgestattet ist, um eine Erstarrung mit unterschiedlichen Abkühlraten zu erzielen. Zusätzlich wurden kleinere Proben bei extrem hohen Abkühlraten gegossen, um n_{max} zu erhalten. Die resultierenden ΔT und die entsprechenden Korndichten wurden für jede Legierung A356, korngefeintes AlCu4 und nicht-korngefeintes AlCu4 gegeneinander aufgetragen und die damit verbundenen Error-Funktionen durch Datenfittung generiert. Von diesen Error-Funktionen ausgehend wurden ΔT_N und ΔT_σ abgeleitet. Nach Verbesserungen des existierenden Programms, z. B. der Synchronisation der Keimbildung von Körnern mit Bildungsereignissen von Festkörper, wurden die gewonnenen Keimbildungsparameter verwendet, um die Experimente numerisch zu reproduzieren und die verwendeten Modelle zu validieren. Die resultierende Korndichte und -größe weisen eine gute Übereinstimmung auf.

Ein zweites Benchmark-Experiment wurde ausgeführt, um den Einfluss von Scherung auf die Kornbildung während der kontinuierlichen Abkühlung von A356 in einem Couette-Rheometer zu erforschen. Die Proben wurden vom flüssigen Zustand ausgehend bei unterschiedlichen Scherraten gleichzeitig gekühlt und geschert, bis etwa 15 vol-% Festkörper erreicht wurden und anschließend in Wasser abgeschreckt. Die Entwicklung der Legierungsviskosität wurde aufgezeichnet sowie Korndichte, Korngrößen und Formfaktoren im Scherspalt bestimmt. Die Korndichte während der Scherung (n_s) wurde mit der Scherrate ($\dot{\gamma}$) und der Korndichte in Abwesenheit von Scherung (n_0) korreliert. Von dieser Korrelation ausgehend, wurde ein Quellterm für die Vervielfachung der Körner unter dem Einfluss von Scherung hergeleitet, der auch einen Quellterm für Unterkühlung ($N_{\Delta T}$) enthält. Zusätzliche Quellterme (N_{s-j} und N_{s-d}) wurden während der Prozesssimulation auftretenden Schersprüngen und Scherabfällen zugewiesen. Die scheinbare Viskosität wurde mit Hilfe verschiedener Nicht-Newton'scher Modelle an die gemessene Viskosität gefittet. Die Viskositäten von Zhang et al.

und Hirai et al. wiesen die beste Übereinstimmung auf und wurden in MeSES implementiert. Da der letztgenannte Ansatz umfassender war, wurde dieser zusammen mit dem Gesamtquellterm der Keimbildung ($N = N_{\Delta T} + N_s + N_{s-j} + N_{s-d}$) verwendet, um die Simulation des Couette Rheometerexperiments auszuführen. Die Ergebnisse für Festphasenanteil, Korndichte und Korngröße wiesen eine gute Übereinstimmung auf. $N_{\Delta T}$ wurde wegen der leichten Zunahme der Abkühlrate mit steigendem $\dot{\gamma}$ relativ angehoben. Die Viskositätsberechnungen lagen nahe an den Messwerten für höhere Scherraten und waren relativ höher bei geringen Scherraten. Wegen ihres Einflusses auf die Strömungs- und Erstarrungssimulation, wird eine weitergehende Erforschung der Viskositätsmodellierung vorgeschlagen.

Als praktische Anwendung wurden Experimente und Simulationen der teilflüssigen Einsatzmaterialherstellung mit dem Kühlkanal-Rheoprozess ausgeführt. Geringe Prozessmodifikationen wurden vorgenommen, um die Genauigkeit der Randbedingungen zu verbessern. Die Einflüsse von Geschwindigkeit und Temperatur am Einlass sowie die Temperaturen des Kanals und des Containers auf die Mikrostrukturbildung des teilflüssigen Gemenges wurden experimentell und numerisch untersucht. Experimente zeigen die Rolle auf, die dem Kühlkanal bei der Bildung des sehr feinen Gemenges aus Rosetten und erstarrten Fragmenten zukommt sowie die Rolle des Containers der den Formfaktor der gebildeten Globuliten verbessert. Ein feineres Gemenge kann bis zu einem gewissen Grad durch Reduktion der Einlasstemperatur und -geschwindigkeit sowie der Kanaltemperatur erzeugt werden. Simulationen weisen eine ähnliche Empfindlichkeit bezüglich Änderung der Randbedingungen auf. Zudem zeigen Simulationen, dass durch Erniedrigung von Einlass- und Kanaltemperatur ein umgekehrter Effekt auf die Kornfeinheit auftreten kann, wenn das Gemenge große Festphasenanteile enthält, so dass die Viskosität ansteigt und die Fließgeschwindigkeit auf dem Kanal verringert, was zu einem schlagartigen Abfall der Kühl-/Scherrate führt. Abermals sei gesagt, dass die Simulationsergebnisse die Bedeutung des verwendeten Viskositätsmodells widerspiegeln und die Notwendigkeit konsistenterer Viskositätsmodelle, die auch kleineren Änderungen des $\dot{\gamma}$ und der Morphologie wiedergeben, hervorheben. Große Verbesserungen der berechneten Korndichte konnten durch die Anwendung des integrierten unterkühlungs- und scherabhängigen Keimbildungsmodells in Kombination mit dem Viskositätsmodell von Hirai erzielt werden. Weitere Verbesserungen stehen in Aussicht, nachdem ein besseres Verständnis für den Scherbeitrag, basierend auf experimentellen Beweisen, erlangt wurde.

Table of Contents

0	Summary	v
0.1	Introduction	v
0.2	Theoretical review	v
0.3	Benchmark experiments	vi
0.4	Numerical model	xi
0.5	Simulation of benchmark experiments	xiii
0.6	Case study: Cooling channel rheocaster	xxvi
0.7	Conclusion	xxxiv
1	Introduction	1
1.1	General	1
1.2	Aim of this work	1
1.3	Outline	3
2	Theoretical review	5
2.1	Grain nucleation	5
2.1.1	The physical phenomena	5
2.1.1.1	Energy and equilibrium	5
2.1.1.2	Heterogeneous versus homogeneous nucleation	7
2.1.1.3	Melt undercooling	9
2.1.2	Dynamic nucleation	11
2.1.3	Heterogeneous grain nucleation models	13
2.2	Rheology of semi-solid slurries	17
2.2.1	Classification of flow models	18
2.2.2	Viscosity models	20
2.3	Solidification under dynamic conditions	22
2.3.1	Morphological evolutions under convective flow	22
2.3.2	Agglomeration based models	27
2.3.3	Modeling particle growth under shear flow	30
2.3.4	Grain multiplication mechanisms	32
2.3.5	Solidification under turbulent shear flow	37

3	Benchmark experiments	41
3.1	Determination of heterogeneous grain nucleation parameters	41
3.1.1	Experimental setup	41
3.1.2	Procedure of experiments	45
3.1.3	Results and discussion	47
3.2	Influence of shear on grain formation	58
3.2.1	Setup and experiment plan	58
3.2.2	Microstructure characterization	60
3.2.3	Experimental results	60
3.2.4	Analysis of the results	65
4	Numerical model	69
4.1	Transport equations	69
4.1.1	Mass	69
4.1.2	Momentum	70
4.1.3	Species	70
4.1.4	Heat	70
4.1.5	Grain transport	71
4.2	Source terms for transport equations	71
4.2.1	Mass transport	71
4.2.2	Momentum transport	72
4.2.3	Heat transfer	73
4.2.4	Species transport	74
4.3	Source term for grain transport	74
4.3.1	Undercooling-dependent grain density	74
4.3.2	Shear-dependent grain density	76
4.4	Viscosity models	80
4.5	Auxiliary equations	81
4.6	Solution strategy and numerical implementation	81
5	Simulation of benchmark experiments	85
5.1	Heterogeneous nucleation experiment	85
5.1.1	Problem setup	85
5.1.2	Simulation results of A356	87
5.1.3	Simulation results of AlCu4(GR)	92
5.1.4	Results validation	94

5.2 Rheometer experiment	98
5.2.1 Problem setup	98
5.2.2 Simulation results	101
5.2.2.1 Using the classical solidification model	101
5.2.2.2 Newtonian versus non-Newtonian viscosity	108
5.2.2.3 Shear dependent solidification model	112
5.2.3 Results validation	121
6 Case Study: Cooling channel rheocaster	127
6.1 Process description	127
6.2 Experiments	128
6.2.1 Preliminary experiments	128
6.2.2 Validation experiments	131
6.3 Process simulation	133
6.3.1 Setup and boundary conditions	133
6.3.2 Simulation results	135
6.4 Discussion	141
7 Conclusion and Outlook	145
8 Appendices	149
A Geometrical details of the experimental setup	149
B Outcomes of benchmark heterogeneous nucleation experiments	151
C Thermo-physical data and material properties	154
D Geometry and governing equations of the rheometer	155
Symbols and abbreviations	157
References	161