

固空枝晶微结构生长演化非等温定量相场模拟研究

李超龙¹, 文键¹, 王磊¹, 雷刚², 陈强², 屠基元^{3,4}

(1. 西安交通大学能源与动力工程学院, 710049, 西安; 2. 航天低温推进剂技术国家重点实验室, 100028, 北京;
3. 皇家墨尔本理工大学工学院, 3083, 澳大利亚墨尔本; 4. 清华大学核能与新能源技术研究院, 100084, 北京)

摘要: 为了探究热-溶质耦合驱动下固空枝晶生长演化和氧溶质分布规律,建立了非等温定量相场模型,应用该模型研究了不同过冷度及边界热流条件下固空枝晶的形态演化、生长速度、氧溶质分布。结果表明:相比等温模拟,考虑凝固潜热的非等温模拟可以更真实再现固空枝晶的生长过程,氧质量分数峰值相比等温模拟减少了8.5%~14.6%;枝晶的生长速度、最大氧质量分数和初始过冷度呈现正相关性,初始过冷度为4 K时,固液糊状区氧质量分数最大可达到0.401;边界热流的存在可显著改变计算域温度分布进而影响固空枝晶的生长模式;热输入减缓了枝晶的生长,而热提取使枝晶臂生长得更更为繁盛粗壮,热提取、热输入条件下的固相率分别是无边界热流时的138%、69%,最大氧质量分数分别是无边界热流时的146%、94%。该研究可增进对液氢中固空枝晶生长行为的理解,为液氢系统的安全使用提供一定的理论指导。

关键词: 固空枝晶;非等温相场;形态演化;液氢

中图分类号: TK91 **文献标志码:** A

DOI: 10.7652/xjtuxb202308005 **文章编号:** 0253-987X(2023)08-0046-09

Non-Isothermal Quantitative Phase Field Simulation Study on the Growth Evolution of Solid-Air Dendritic Microstructure

LI Chaolong¹, WEN Jian¹, WANG Lei¹, LEI Gang², CHEN Qiang², TU Jiyuan^{3,4}

(1. School of Energy and Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China; 2. State Key Laboratory of Space Cryogenic Propellant Technology, Beijing 100028, China; 3. School of Engineering, RMIT University, Melbourne 3083, Australia; 4. Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: The solid-air accumulated in liquid hydrogen has certain safety hazards. In order to investigate the growth evolution and oxygen solute distribution of solid-air dendrite driven by heat-solute coupling, a non-isothermal quantitative phase field dendrite growth model is established in this paper, which is applied to study the morphological evolution, growth rate and oxygen solute distribution of solid-air dendrites under different subcooling degrees and boundary heat flux conditions. The results show that: compared with isothermal simulation, the non-isothermal simulation considering latent heat of solidification can reproduce the growth process of solid-air dendrites more realistically, and the peak oxygen mass fraction is reduced by 8.5%—14.6% compared with isothermal simulation; the growth rate of dendrites and the maximum oxygen mass

fraction show a positive correlation with the initial subcooling degree, and the maximum oxygen mass fraction in the solid-liquid interphase zone can reach 0.401 when the initial subcooling degree is 4 K; the presence of boundary heat flux can significantly change the temperature distribution in the computational domain and thus affects the growth pattern of solid-air dendrites; heat input slows down the growth of dendrites, while heat extraction makes the dendrite arms grow more prosperous and robust, and the solid fraction under heat extraction and heat input conditions are 138% and 69% of those without boundary heat flux, and the maximum oxygen mass fractions are 146% and 94% of those without boundary heat flux, respectively. This study improves the understanding of the solid-air dendrite growth behavior in liquid hydrogen and may provide theoretical guidance for the safe use of liquid hydrogen systems.

Keywords: solid-air dendrite; non-isothermal phase field; morphological evolution; liquid hydrogen

液氢液氧组合的低温推进剂因其高比冲特性已广泛应用于大推力火箭发动机^[1-2]。渗入或管路中残存的空气与液氢接触而形成并积聚的固空颗粒对液氢液氧发动机系统的安全构成威胁。一方面,固空颗粒内氧溶质分布不均,往往表面含有更多的氧^[3]。表面富氧的固空颗粒和液氢在因摩擦而产生的静电等微弱能量的激发下存在爆炸风险^[4];另一方面,积聚的固空颗粒随液氢的流动迁移可能对细小的管路或阀门造成堵塞,从而影响发动机稳定性。在给定激发条件下,研究表明固空含氧量是引发液氢爆炸与否的重要因素^[5]。因此,对固空微结构的生长演化和伴随的氧溶质偏析再分布过程的预测具有重要意义。

刘海生等^[6-7]将空气通入液氢观察到了沉积在液氢杜瓦底部的雪花状固空并对固空采取复温方法测量了氮氧含量,初步验证了固空表面富氧的特性。然而,由于固空枝晶尺度微小以及液氢的低温不稳定性,当前实验均未能直接观察到固空枝晶生长过程更难以定量测量固空枝晶内部氧溶质分布,通过实验手段获取固空枝晶的完整生长信息具有巨大挑战。文献[8-9]通过建立的格子玻尔兹曼和元胞自动机耦合模型得到了对流诱导下六重对称固空枝晶的形态演化,验证了固空枝晶外部富氧的偏析分布特征。然而,所得到的固空枝晶微结构仅包含一次枝晶臂,固空枝晶形态较为简单并不能完全反映真实固空枝晶微结构,模型的定量能力尚待提高。相场法通过引入序参量表征与时间和空间相对应的相,可以避免对固液界面的直接追踪,序参量在均匀相中保持液相和固相,在固液界面处则在二者之间连续变化。根据文献[10-12],该方法陆续被拓展用于二元和多元合金系统^[13-14]。然而,这些研究大多仅求解了溶质场并没有将温度场的求解考虑在内,将凝固潜热忽略并认为计算域维持恒定温度即等

温^[15],类似的假设还有冻结温度、恒定温降速率等,这本质上是一种简化解耦方法。实际上,固空枝晶微结构的形成与生长受到热和溶质耦合扩散的制约,固空枝晶微结构的演化实际上由一组温度、溶质及相场相互耦合的非线性偏微分方程控制,而热和溶质扩散能力的巨大差异额外增加了计算成本,这使得方程组的求解变得困难。Chen等^[19]开发了自适应网格算法进行了强制对流下枝晶的非等温相场模拟,计算量的减少使得模拟可以在更大尺度上进行。Guo等^[20]开发了一种并行多重网格技术求解了耦合的非线性相场方程组,得到了多枝晶在热-溶质耦合条件下的动态演化。此外,针对具有六重对称性的固空枝晶,规则笛卡尔网格带来的虚假网格各向异性需要消除, Ji等^[21]基于两个基础离散基的线性组合开发了一种各向同性的有限差分方法而不需要求解额外的方程很好解决了网格虚假各向异性的问题。尽管考虑热和溶质完全耦合下的定量固空枝晶微结构演化和溶质分布具有重要意义,但目前尚未有公开的报道。

本文将空气视为只包含二元组分氧气和氮气,降温后形成成分均匀的二元溶液,氧为溶质,开发了非等温定量相场模型对液氢中二元固空枝晶的生长演化进行了研究,并将等温和非等温相场模拟进行了对比。在此基础上,研究了单枝晶和多枝晶在复杂热力环境下的微结构形态演化和溶质偏析分布规律。

1 数值模型与求解

1.1 定量相场模型

在本研究中,固空枝晶凝固时固液界面的推进由耦合溶质与能量扩散过程的定量相场模型计算。通过引入反捕获项恢复局部界面平衡,消除溶质扩散能力差异导致的界面拉伸和表面扩散效应。假设固相和液相具有相同的热扩散系数,并且不考虑溶

质在固相中的扩散。为了使相场在较大网格下的时间依赖演化中保持数值稳定,本研究采用经非线性预处理的相场

$$\varphi(x, y, t) = \tanh\left\{\frac{\psi(x, y, t)}{\sqrt{2}}\right\} \quad (1)$$

耦合热和溶质扩散的定量相场控制方程为

$$\begin{aligned} [A(\hat{n})]^2 \left[\frac{1}{Le} + Mc_\infty [1 + (1+k)U] \right] \frac{\partial \psi}{\partial t} = \\ \sqrt{2} [\varphi - \lambda(1 - \varphi^2)(\theta + Mc_\infty U)] + \\ A(\hat{n})^2 (\nabla^2 \psi - \varphi \sqrt{2} |\nabla \psi|^2) + \nabla [A(\hat{n})^2] \cdot \nabla \psi + \\ \sum_q \left[\partial_q (|\nabla \psi|^2 A(\hat{n}) \frac{\partial A(\hat{n})}{\partial (\partial_q \psi)}) \right] \end{aligned} \quad (2)$$

式中: $M = |m_1| (1-k)/(L_h/c_p)$ 为液相线斜率 m_1 的比例缩放幅度, 其中 k 为氧溶质分配系数, L_h 为溶液凝固潜热, c_p 为溶液比定压热容; c_∞ 为远场质量分数; $(\theta + Mc_\infty U)$ 代表凝固的热-溶质驱动力; λ 为耦合参数; $Le = \alpha/D$ 为路易斯数, 其中 α 为氧溶质热扩散系数, D 为氧溶质扩散系数; q 为空间坐标分量, 即 $q = (x, y)$ 。固液界面法向单位矢量 $\hat{n} = -\nabla \varphi / |\nabla \varphi|$, 六重对称各向异性函数为^[22]

$$A(\hat{n}) = 1 + \varepsilon_1 \cdot$$

$$\frac{[(\partial_x \varphi)^6 - 15(\partial_x \varphi)^4 (\partial_y \varphi)^2 + 15(\partial_x \varphi)^2 (\partial_y \varphi)^4 - (\partial_y \varphi)^6]}{|\nabla \varphi|^6} \quad (3)$$

$\hat{n}$ 与水平轴之间的夹角 φ 满足 $\sin \varphi = \partial_y \varphi / |\nabla \varphi|$, $\cos \varphi = \partial_x \varphi / |\nabla \varphi|$, 则式(3)以表面张力各向异性的标准形式给出

$$A(\hat{n}) = a_s(\varphi) = 1 + \varepsilon_1 \cos[6(\varphi - \varphi_0)] \quad (4)$$

式中: ε_1 为各向异性强度系数; φ_0 为相对于 x 轴晶体取向角度。当 $\varphi_0 = 0^\circ$ 时式(4)与式(3)等效。

定义无量纲温度 θ 为

$$\theta = \frac{(T - T_m - m_1 c_\infty) c_p}{L_h} \quad (5)$$

式中 T_m 为纯溶剂(液氮)的熔点温度。

氧溶质质量分数扩散方程为

$$\begin{aligned} (1+k-(1-k)\varphi) \frac{\partial U}{\partial t} = \nabla \cdot [\tilde{D}(1-\varphi) \nabla U + \\ j_{\text{at}}] + [1+(1-k)U] \frac{(1-\varphi^2)}{\sqrt{2}} \frac{\partial \psi}{\partial t} \end{aligned} \quad (6)$$

$$U = \frac{1}{1-k} \left[\frac{c/c_1^0}{k(1+\varphi)/2 + (1-\varphi)/2} - 1 \right] \quad (7)$$

反捕获项 j_{at}

$$j_{\text{at}} = (1+(1-k)U) \frac{(1-\varphi^2)}{2} \frac{\partial \psi}{\partial t} \frac{\nabla \psi}{|\nabla \psi|} \quad (8)$$

式中: c 为氧溶质质量分数; $c_1^0 = (T_m - T_{\text{int}})/|m_1|$ 为在温度 T_{int} 下的饱和液相质量分数。无量纲溶质扩

散系数 $\tilde{D}$ 为

$$\tilde{D} = \frac{D\tau_0}{W_0^2} = a_1 a_2 \frac{W_0}{d_0} \quad (9)$$

$$d_0 = \frac{\Gamma}{L_h/c_p} \quad (10)$$

式中: τ_0 为松弛时间; $a_1 = 0.8839^{[23]}$; $a_2 = 0.6267$ 。 $\tau_0 = a_2 \lambda W_0^2/D$, $\lambda = a_1 W_0/d_0$; W_0 为固液界面厚度; d_0 为毛细长度; Γ 为固液生长界面的 Gibbs-Thomson 系数。

无量纲能量方程为

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = (Le\tilde{D}) \left(\frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial y^2} \right) + \frac{1}{2} \frac{\partial \varphi}{\partial t} \quad (11)$$

式中 $Le\tilde{D}$ 为无量纲热扩散系数, 方程右边最后一项为凝固潜热释放的源项。

1.2 模型数值求解

式(2)、(6)、(11)的空间离散均基于 x 、 y 方向具有相同空间步长 Δx 的规则笛卡尔网格。在本研究中, 采用了文献[21]提出的一种基于两个离散基线性组合的有限差分方法, 有效消除了虚假的网格各向异性。相场模型在时间域的推进则采用欧拉显示方案, 时间步长为 Δt 。由于热扩散系数与溶质扩散系数有两个数量级的差异, 因此式(11)的求解采用交替方向隐式格式以节约计算成本。相场 φ 通过预处理相场 ψ 的演化获得, 当 $|\psi| \geq 10.27$ 时, $|1-\varphi| \leq 10^{-6}$, 此时认为处于单一均匀相, 零扩散诺伊曼边界条件用于 ψ 、 U 、 θ 的四周边界, 作为确定性方法之一, 本模型不考虑晶核的形成过程, 本模型验证部分可参考文献[15]。对于单枝晶计算, 初始时刻, 半径为 R_0 的晶核被置于计算域中心位置, 初始条件设定为

$$\begin{cases} (x-x_0)^2 + (y-y_0)^2 \leq R_0^2, \\ \varphi = 1, T = T_{\text{int}}, c = kc_\infty \\ (x-x_0)^2 + (y-y_0)^2 > R_0^2, \\ \varphi = -1, T = T_{\text{int}}, c = kc_\infty \end{cases} \quad (12)$$

式中: (x_0, y_0) 为计算域中心坐标。

2 计算结果及分析

2.1 等温和非等温凝固的对比

枝晶的生长由热和溶质共同驱动, 而以往研究往往采用等温相场模型, 对于固空枝晶, 这种简化带来的影响尚不清楚。本节将从固空枝晶形态, 氧溶质分布研究等温和非等温相场模拟下固空枝晶生长凝固的差异。计算域网格分辨率设置为 302×302 , 初始氧溶质质量分数为 0.233, 等温、非等温模拟的初始过冷度均为 3 K。对于等温模拟, 固空枝晶凝固潜热不予考虑, 整个计算域温度维持初始温度即保持恒定过冷度。经过网格无关性验证的网格步长

及模拟所采用其他参数如表 1 所示。

表 1 模型参数及物性参数^[24-25]

Table 1 Model and physical parameters used in the phase-field model^[24-25]

参数	数值
T_m/K	63.17
$\alpha/(m^2 \cdot s^{-1})$	1.645×10^{-7}
$L_h/(kJ \cdot kg^{-1})$	20.59
$c_p/(kJ \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1})$	1.901
$D/(m^2 \cdot s^{-1})$	2.5×10^{-9}
$\Gamma/(m \cdot K)$	5×10^{-8}
ϵ_1	0.095
$m_1/(K \cdot \%^{-1})$	-12.23
k	0.393 5
W_0/m	6×10^{-8}
$\Delta x \cdot W_0^{-1}$	0.4
$\Delta t \cdot \tau_0^{-1}$	0.000 3

相同时刻等温和非等温模拟下的固空枝晶如图 1 所示。对于图 1(a)非等温模拟,左半边为温度场分布并以黑实线勾勒出了固空枝晶形态,右半边则为氧质量分数分布;对于图 1(b)等温模拟,由于温度恒定只给出了完整的氧质量分数分布。在枝晶取向及各向异性的作用下,圆形晶核在等温、非等温模拟下都生长成为具有发达二次枝晶臂的典型雪花状枝晶。由于热扩散系数高于溶质扩散系数两个数量级,可以看到液相区温度扩散层要明显厚于氧溶质扩散层。由于凝固潜热的释放,计算域温度升高,并在固空枝晶的生长凝固前沿具有最大值。温度的升高降低了枝晶生长速度,一个直观的现象是非等温下的枝晶尺寸更小。图 1 中非等温模拟时的枝晶臂长度为等温时的 82%。固空枝晶固液界面附近形成了一个薄的溶质扩散层,在这个扩散层内氧质量分数明显偏高,二次枝晶臂之间形成的间隙阻碍了溶质的扩散,氧质量分数最大值便出现在这些间隙中,固空枝晶 6 个一次枝晶臂和众多二次枝晶臂的晶轴线上均具有较低的氧质量分数,沿垂直于晶轴向外,氧质量分数增长即外部富氧。

固空枝晶中氧的溶解度较低,因此固空枝晶生长过程中会发生溶质偏析现象即部分氧溶质被排放到液相中造成不均匀的氧分布特征,这种不均匀的氧分布表现为枝晶外部富氧状态。图 2 定量给出了等温和非等温模拟得到的沿水平中线(L_1)和竖直线(L_2)的氧溶质分布,图中标识 A、B、C、D 与图 1(b)相对应,是计算域中出现氧质量分数峰值的

位置,其中 A、B 位于枝晶内部由枝晶臂间隙形成,而 C、D 则是在固液界面附近。可以发现等温模拟下 4 个位置的氧质量分数均被过分估计,以初始氧质量分数(0.233)为单位 1,则位置 C、D 处的氧质量分数相比于非等温分别高出 14.6%、8.5%。对于非等温模拟,C、D 处的氧质量分数分别是初始时的 154.9%、129.2%。

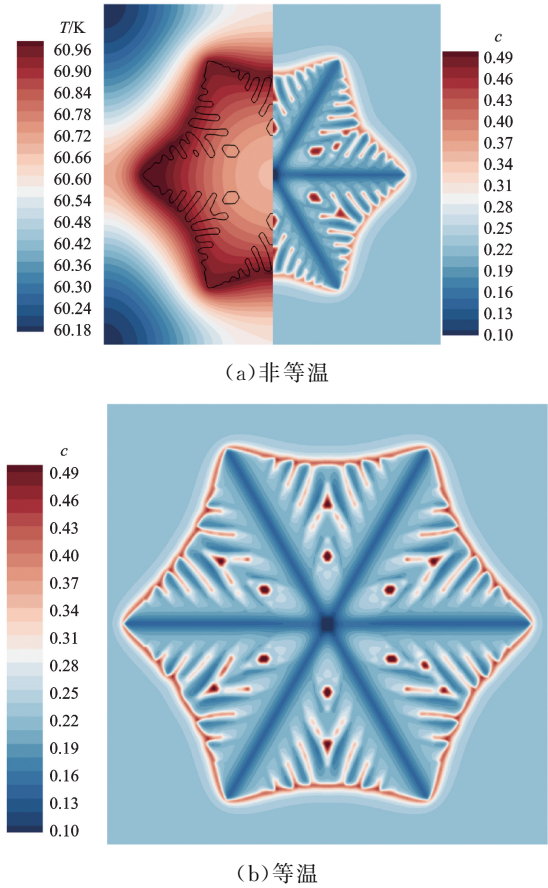


图 1 相场模拟下的固空枝晶

Fig. 1 Solid-air dendrites under phase field simulations

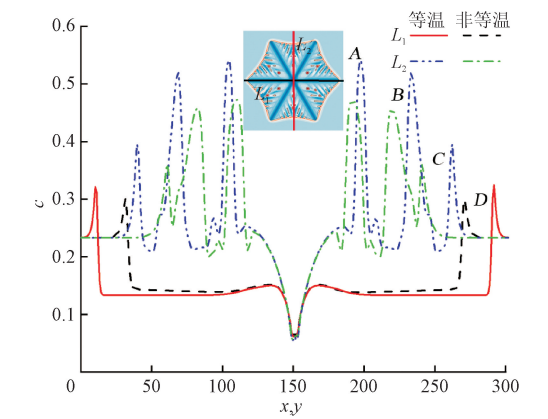


图 2 等温和非等温模拟下沿 L_1 、 L_2 线氧质量分数分布
Fig. 2 Oxygen concentration distribution along L_1 and L_2 lines under isothermal and non-isothermal simulations

2.2 单枝晶生长:初始过冷度的影响

图3给出了不同初始过冷度下固空枝晶无量纲尖端生长速度($V^{\text{nd}}=V\tau_0/W_0$)、固相率 F_s (固相占据计算域的比例)随时间 Δt 的变化,尖端生长速度 V 通过监测固液面推进获得。不同初始过冷度下的枝晶在凝固开始均有一个最大的生长速度,并且最大速度随初始过冷度增大而升高,随着凝固的进行,枝晶尖端生长速度持续下降。初始过冷度为1 K时,尖端生长速度几乎呈现线性下降,随着初始过冷度增加,枝晶尖端生长速度随时间下降速率变大。初始过冷度越大,固空枝晶越快的发展出发达的枝晶臂表现为固相率的快速升高,繁盛枝晶臂形成释放的大量潜热显著提升了尖端区域的温度从而降低了枝晶生长的驱动力,使得枝晶尖端生长速度快速下降。

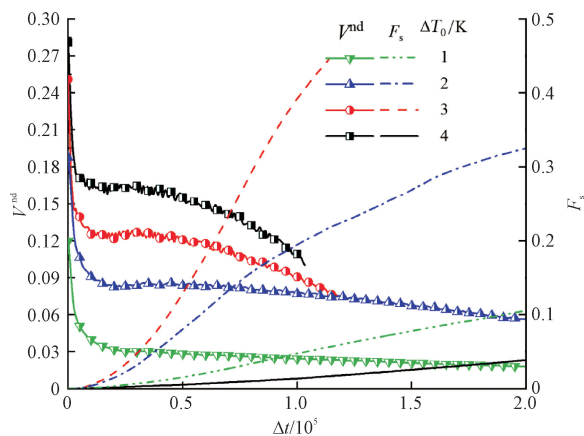


图3 不同初始过冷度下尖端速度和固相率随时间的变化

Fig. 3 Variation of tip velocity and solid fraction with time for different initial subcooling degrees

图4给出了固空枝晶尖端附近竖直 L_1 线上半部分的氧质量分数和相场分布。可以看到相场参数经历了自液相至固相的过渡转变,这一过度区域即为固液糊状区。不同初始过冷度下氧质量分数均呈现自晶轴中心向外逐渐增大的趋势,并在固液糊状区达到峰值后在液相区快速降低,这符合枝晶内部贫氧外部富氧的实验结果,氧质量分数峰值出现在固液糊状区而非固液界面处(等值线 $\varphi=0$)。固液糊状区内氧质量分数峰值随初始过冷度的增大而升高并均高于初始氧质量分数(0.233)。固液糊状区氧质量分数峰值 C_m 与初始过冷度对应关系为: $\Delta T_0=1\text{ K}$, $C_m=0.304$; $\Delta T_0=2\text{ K}$, $C_m=0.324$; $\Delta T_0=3\text{ K}$, $C_m=0.354$; $\Delta T_0=4\text{ K}$, $C_m=0.401$;固液界

面处氧质量分数与初始过冷度对应关系为: $\Delta T_0=1\text{ K}$, $C_i=0.224$; $\Delta T_0=2\text{ K}$, $C_i=0.269$; $\Delta T_0=3\text{ K}$, $C_i=0.302$; $\Delta T_0=4\text{ K}$, $C_i=0.343$ 。

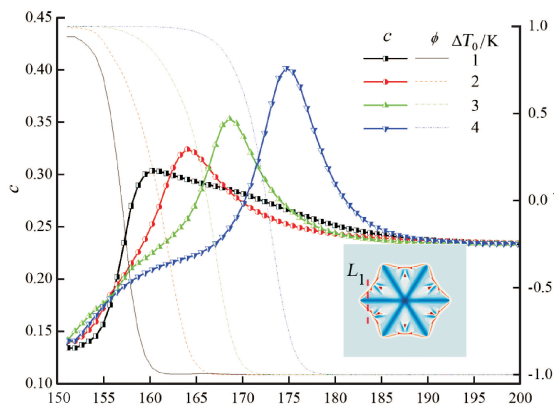


图4 不同初始过冷度下沿 L_1 上半部氧质量分数和相场分布

Fig. 4 Oxygen mass fraction and phase field distribution along the upper half of L_1 at different initial subcooling degrees

2.3 多枝晶生长:边界热流的影响

固空枝晶往往以多枝晶形式出现,本节对边界诱导热流作用下多枝晶生长演化进行了研究。计算域网格分辨率设置为 602×602 ,并在初始时刻放置5个具有不同取向的晶核,晶核位置和取向可以是随机的。边界诱导热流作用在计算域底部边界,分为热输入和热提取,热流密度均为 121.5 kW/m^2 。四周采用周期性边界,其他条件与3.1节保持相同。

图5展示了热输入和热提取以及无边界热流下初始时刻和时间间隔均为 $50\,000\Delta t$ 的固空枝晶形态演化。初始时刻,边界热流的影响尚不明显,不同热力条件下的固空枝晶形态几乎一致并未分化出二次枝晶臂。随着枝晶生长的进行,各枝晶间距离缩短,枝晶形态开始变得复杂,枝晶间相互作用效应显现,并且靠近下边界的枝晶臂和无热流条件下相比具有明显不同。对于图5(a)中热输入,位于热流边界侧的枝晶臂生长变缓,而对于图5(c)中热提取,位于热流边界侧的枝晶臂变得更为粗壮并具有更繁盛的二次枝晶臂。

图6给出了不同热力条件下固空枝晶固相率随时间的变化,初可知始阶段由于枝晶远离热流边界,不同热力条件下固相率增长接近,在热提取和无边界热流时固相率持续增长,对于热输入,固相率后期趋于平缓。在 4×10^5 时,热提取、热输入条件下的

固相率分别是无边界热流时的 1.38 倍、0.69 倍。枝晶生长模式的差异主要在于边界热流改变了计算域的温度分布。

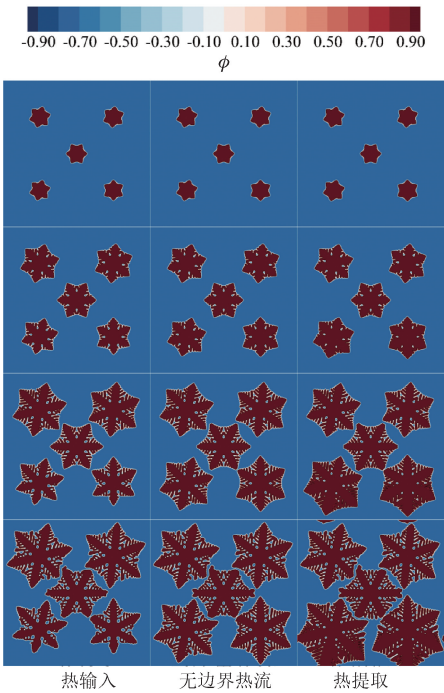


图 5 不同热力条件下固空枝晶形态演化
Fig. 5 Morphological evolution of solid-air dendrites under different thermal conditions

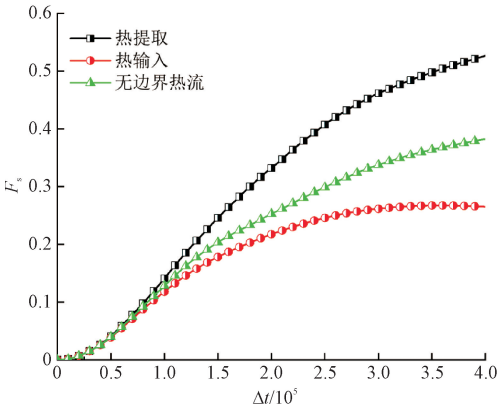


图 6 不同热力条件下固相率随时间变化
Fig. 6 Variation of solid fraction with time under different thermal conditions

图 7 给出了与图 5 最右列相对应的温度分布,对于图 7(b)无边界热流时,由于枝晶生长是潜热的释放,枝晶尖端位置具有较高的温度。由于受到其他枝晶的阻碍和多个枝晶共同释放潜热的影响,位于中心的枝晶生长受到明显抑制。这一现象同样出现在图 7(a)热输入和图 7(c)热提取条件下,不同的

是,边界热流的存在替代了凝固潜热对温度场分布的主导地位,使得靠近底部热流边界侧出现了竖直方向明显的温度梯度,这是影响热流边界侧枝晶臂生长模式的重要原因。

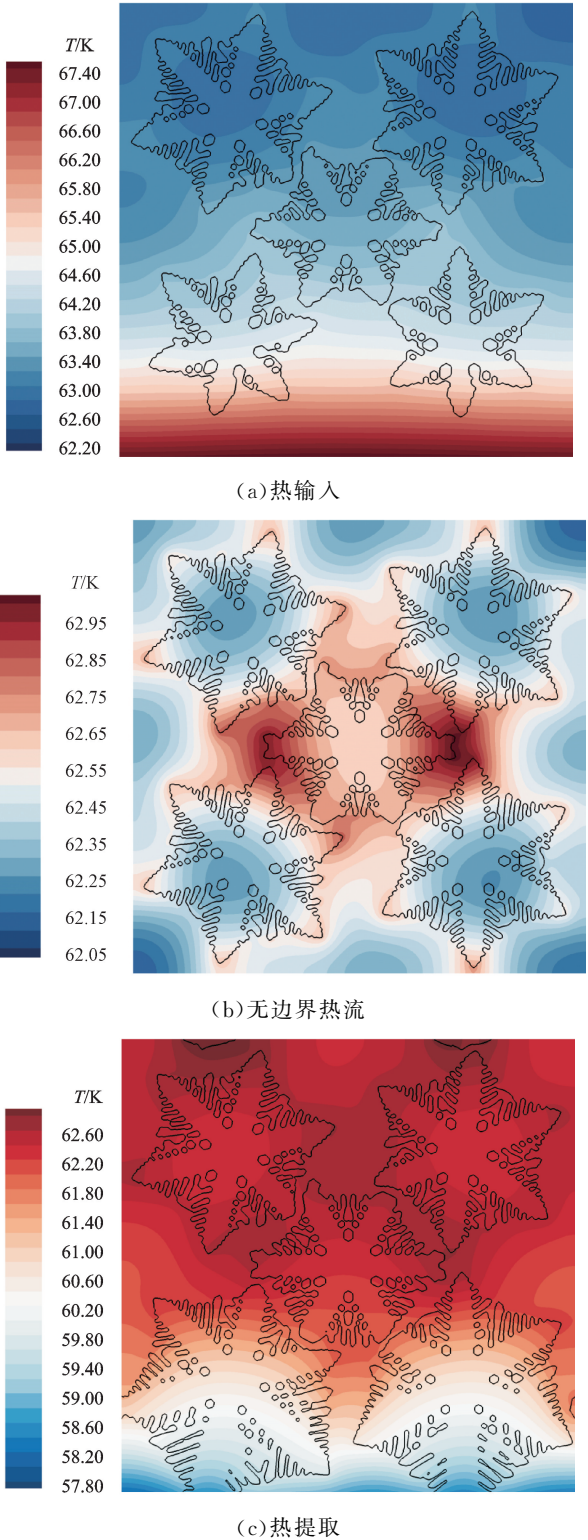


图 7 不同热力条件下温度分布
Fig. 7 Temperature distribution under different thermal conditions

图 8 展示了与图 5 相对应的氧溶质质量分数分布随时间的变化。初始阶段各枝晶距离较远,相互之间没有影响,不同热力条件下氧溶质分布非常接近。随着固空枝晶的生长,枝晶开始分化出复杂的二次枝晶臂,特别是在热提取条件下,靠近边界热流侧的枝晶臂更为发达。繁盛枝晶臂形成的间隙使得氧溶质聚集,而枝晶间形成了晶界不利于氧溶质的扩散也使得局部氧溶质质量分数升高。热输入条件下,枝晶生长受到抑制,整体氧溶质质量分数相对较小。

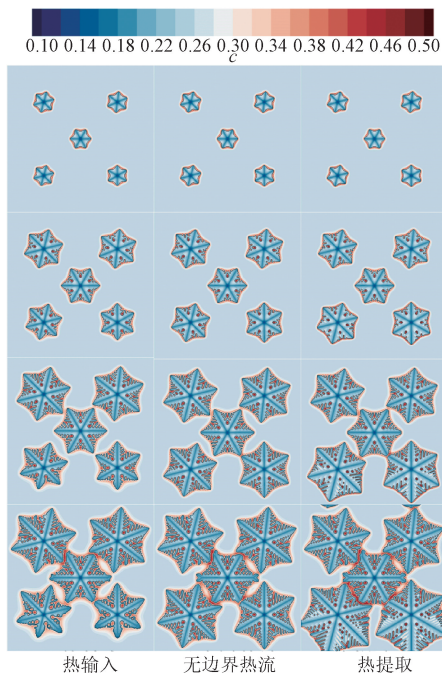


图 8 不同热力条件下氧溶质分布随时间变化

Fig. 8 Oxygen solute distribution with time under different thermal conditions

图 9 给出了不同热力条件下计算域最大氧溶质质量分数 $c_{\max}$ 随时间的变化情况。初始阶段,在过冷度驱动下枝晶快速生长并不断排出氧溶质至固液糊状区,使得最大氧溶质持续升高。随着潜热的释放,计算域温度升高,溶质扩散能力增强,同时过冷度下降减缓了枝晶生长,使得无边界热流和热输入条件下最大氧溶质质量分数持续下降。由于最大氧溶质质量分数出现在远离边界热流侧,因此二者的差别在前期不太明显,随着时间的进行,边界热流的影响深入计算域上部,二者的差别开始增大。对于热提取条件,氧溶质曲线出现一段平缓区域,这是因为此时处于潜热释放和热提取的平衡过度阶段,随着时间进行热提取占据主导,计算域过冷度增大,枝晶臂快速增长,最大氧溶质质量分数又开始升高。

在 4×10^5 时,热提取、热输入条件下的最大氧溶质质量分数分别是无边界热流时的 146%、94%。

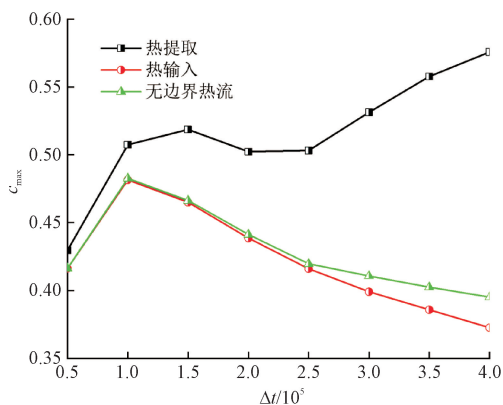


图 9 不同热力条件下最大氧质量分数随时间变化

Fig. 9 Variation of maximum oxygen mass fraction with time under different thermal conditions

3 结 论

本文建立了非等温定量相场模型研究了液氢中具有六重对称性的固空枝晶的生长演化和氧溶质分布特性。得到如下主要结论。

(1) 相比于等温模拟,非等温条件下因潜热释放减弱了枝晶生长驱动力,枝晶整体尺寸缩小,枝晶臂长度为等温时的 82%。温度升高同时增强了氧溶质的扩散能力,使得计算域内氧质量分数降低,与等温模拟相比,氧质量分数降低 8.5%~14.6%。

(2) 固空枝晶尖端生长速度、枝晶形态复杂度及固液糊状区氧质量分数峰值随初始过冷度增加而增大。初始过冷度由 1 K 增加到 4 K,固液糊状区氧质量分数峰值由 0.304 增至 0.401。氧质量分数总体呈现内部贫氧外部富氧的分布特征。

(3) 边界热流的存在极大的改变了计算域的温度分布,进而影响了固空枝晶形态演化和氧溶质分布。热输入减缓了枝晶的生长,而热提取使得枝晶臂更为繁盛粗壮,热提取、热输入条件下的固相率分别是无边界热流时的 1.38 倍、0.69 倍,最大氧溶质质量分数分别是无边界热流时的 146%、94%。

参考文献:

- [1] 谢福寿, 雷刚, 王磊, 等. 过冷低温推进剂的性能优势及其应用前景 [J]. 西安交通大学学报, 2015, 49 (5): 16-23, 127.
- XIE Fushou, LEI Gang, WANG Lei, et al. Performance advantages and application prospects of subcooled

- cryogenic propellants [J]. *Journal of Xi'an Jiaotong University*, 2015, 49(5): 16-23, 127.
- [2] 王娇娇, 陈虹, 厉彦忠, 等. 低温管路预冷过程两相流动与换热计算研究 [J]. *西安交通大学学报*, 2019, 53(1): 93-99.
- WANG Jiaojiao, CHEN Hong, LI Yanzhong, et al. Research on the two-phase flow and heat transfer characteristics of cryogenic pipeline chill-down process [J]. *Journal of Xi'an Jiaotong University*, 2019, 53(1): 93-99.
- [3] ZHENG Xiaohong, DAI Wenxiao, SHU Zhiyong, et al. Numerical simulation of air solidification process in liquid hydrogen with LBM-CA coupled method [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2023, 48(30): 11567-11577.
- [4] 余炳延, 苏嘉南, 安刚. 液氢容器复温周期确定方法研究 [J]. *低温与超导*, 2019, 47(1): 21-25.
- YU Bingyan, SU Jianan, AN Gang. Theoretical analysis on reheating cycle of liquid hydrogen container [J]. *Cryogenics and Superconductivity*, 2019, 47(1): 21-25.
- [5] CASSUTT L H, MADDOCKS F E, SAWYER W A. A study of the hazards in the storage and handling of liquid hydrogen [C]//*Advances in Cryogenic Engineering*. Boston, MA: Springer US, 1960: 55-61.
- [6] 刘海生, 张震, 邱小林, 等. 液氢中固空沉积形式的试验研究 [J]. *低温工程*, 2015(1): 13-16.
- LIU Haisheng, ZHANG Zhen, QIU Xiaolin, et al. Experimental study of sedimentary formation of solid air in liquid hydrogen [J]. *Cryogenics*, 2015(1): 13-16.
- [7] 苏嘉南, 刘海生, 安刚. 液氢储罐固态空气沉积试验研究 [J]. *低温与超导*, 2018, 46(9): 34-38.
- SU Jianan, LIU Haisheng, AN Gang. Experimental study on sedimentary solid air in liquid hydrogen storage tank [J]. *Cryogenics and Superconductivity*, 2018, 46(9): 34-38.
- [8] LI Chaolong, WEN Jian, WANG Lei, et al. Mesoscopic-scale study of convection-induced morphological evolution of solid-air dendrites in liquid hydrogen [J]. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 2022, 139: 106426.
- [9] LI Chaolong, WEN Jian, WANG Lei, et al. Modeling on transient microstructure evolution of solid-air solidification process under continuous cooling in liquid hydrogen [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2022, 47(81): 34640-34655.
- [10] KARMA A. Phase-field formulation for quantitative modeling of alloy solidification [J]. *Physical Review Letters*, 2001, 87(11): 115701.
- [11] ECHEBARRIA B, FOLCH R, KARMA A, et al. Quantitative phase-field model of alloy solidification [J]. *Physical Review*, 2004, 70(6): 061604.
- [12] RAMIREZ J C, BECKERMANN C, KARMA A, et al. Phase-field modeling of binary alloy solidification with coupled heat and solute diffusion [J]. *Physical Review*, 2004, 69(5): 051607.
- [13] NABAVIZADEH S A, LENART R, ESHRAGHI M, et al. Dendritic solidification of succinonitrile - 0.24 wt% water alloy: a comparison with microgravity experiments for validating dendrite tip velocity [J]. *Acta Astronautica*, 2020, 175: 163-173.
- [14] OHNO M. Quantitative phase-field modeling and simulations of solidification microstructures [J]. *ISIJ International*, 2020, 60(12): 2745-2754.
- [15] 李超龙, 文键, 王磊, 等. 液氢中固空枝晶生长凝固定量相场法研究 [J]. *西安交通大学学报*, 2023, 57(3): 128-135.
- LI Chaolong, WEN Jian, WANG Lei, et al. Quantitative phase field modeling of solid-air dendrite growth solidification in liquid hydrogen [J]. *Journal of Xi'an Jiaotong University*, 2023, 57(3): 128-135.
- [16] YANG Cong, XU Qingyan, LIU Baicheng. GPU-accelerated three-dimensional phase-field simulation of dendrite growth in a nickel-based superalloy [J]. *Computational Materials Science*, 2017, 136: 133-143.
- [17] SAKANE S, TAKAKI T, OHNO M, et al. Two-dimensional large-scale phase-field lattice Boltzmann simulation of polycrystalline equiaxed solidification with motion of a massive number of dendrites [J]. *Computational Materials Science*, 2020, 178: 109639.
- [18] ROJAS R, SOTOMAYOR V, TAKAKI T, et al. A phase field-finite difference lattice Boltzmann method for modeling dendritic growth solidification in the presence of melt convection [J]. *Computers & Mathematics with Applications*, 2022, 114: 180-187.
- [19] CHEN C C, TSAI Y L, LAN C W. Adaptive phase field simulation of dendritic crystal growth in a forced flow: 2D vs 3D morphologies [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2009, 52(5/6): 1158-1166.
- [20] GUO Z, MI J, GRANT P S. An implicit parallel multigrid computing scheme to solve coupled thermal-solute phase-field equations for dendrite evolution [J]. *Journal of Computational Physics*, 2012, 231(4): 1781-1796.
- [21] JI Kaihua, TABRIZI A M, KARMA A. Isotropic finite-difference approximations for phase-field simulations of polycrystalline alloy solidification [J]. *Journal*

- of Computational Physics, 2022, 457: 111069.
- [22] WANG Yongbiao, WEI Mingguang, LIU Xintian, et al. Quantitative multi-phase-field modeling of non-isothermal solidification in hexagonal multicomponent alloys [J]. China Foundry, 2022, 19(3): 263-274.
- [23] WANG Xuezhou, MAO Shilin, WANG Jincheng, et al. Numerical modelling of equiaxed dendritic growth with sedimentation in the melt of binary alloys by using an anisotropic lattice Boltzmann-phase field model [J]. International Journal of Thermal Sciences, 2022, 178: 107592.
- [24] KOCHENBURGER T M, GROHMANN S, OELLRICH L R. Evaluation of a two-stage mixed refrigerant cascade for HTS cooling below 60 K [J]. Physics Procedia, 2015, 67: 227-232.
- [25] NIST. Thermophysical properties of fluid systems [EB/OL]. [2022-12-06]. <https://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/>.

(编辑 赵炜)