

Evolución microestructural durante la Solidificación Unidireccional de Al-0.5%Cu.

O. Fornaro, H. Palacio y H. Biloni

IFMAT (Universidad Nacional del Centro de la Provincia de Buenos Aires -
Comisión de Investigaciones Científicas de la Provincia de Buenos Aires)
Pinto 399 (7000) Tandil - Argentina. TelFAX: +54 293 42821.
e-mail: hpalacio@tandil.edu.ar

Se ha llevado a cabo el análisis estructural de probetas de la aleación Al-0.5%Cu que han sido crecidas unidireccionalmente bajo condiciones estrictamente controladas del parámetro $G_L V^{-1}$ (Gradiente térmico frente a la interfaz y Velocidad de avance de la misma, respectivamente). La utilización de técnicas de congelado de la interfaz durante el crecimiento cristalino, unido al análisis metalográfico en cortes longitudinales y transversales de las muestras permitieron determinar los mecanismos de transición entre los diferentes tipos de estructuras halladas. Estos mecanismos se encontrarían asociados a la estabilidad de las condiciones locales del frente de solidificación.

The analysis of Al-0.5 wt % Cu samples, which have been directionally grown under strictly controlled conditions for $G_L V^{-1}$ parameter (Thermal gradient in front of the interface and Velocity of same interface, respectively) were developed. By using crystalline growth quenching techniques and metallographic analyses in transversal and longitudinal sections to determine the transition mechanisms between the various observed structures. Those mechanisms might be associated with the local stability conditions at the solidification front.

I. Introducción

La solidificación unidireccional es uno de los métodos de mayor utilización para la producción de componentes de alta calidad, ya que permite un control preciso de la microestructura resultante⁽¹⁾. Esta microestructura influye en las propiedades mecánicas de la pieza terminada. Por esta razón el análisis de las inestabilidades de una interfaz plana y su reorganización en arreglos de celdas y dendritas ha recibido una particular atención por parte del metalurgista⁽²⁻⁵⁾.

Durante la solidificación unidireccional los campos térmicos y de microsegregación dependen de un modo no lineal de la morfología de la interfaz Sólido-Líquido, constituyéndose de este modo en un problema no local dependiente del tiempo. Debido a la complejidad que esto acarrea, los análisis teóricos que vinculan la microestructura con los parámetros de solidificación tienen relativo éxito en condiciones de velocidad uniforme y para sistemas físicos sencillos⁽⁶⁻⁸⁾. El cambio de morfología para condiciones dinámicas de solidificación fue considerado para casos particulares como la transición plana-celular en condiciones críticas y subcríticas para diversos materiales^(9,12). No fue incluido en estos análisis el posterior desarrollo de celdas en dendritas, si bien los crecimientos dendríticos también han sido estudiados en profundidad para situaciones particulares^(5,13). En este aspecto, las simulaciones numéricas han recibido un especial interés desde hace algún tiempo⁽¹⁴⁻¹⁸⁾.

En este trabajo estudiamos en forma experimental por medio de crecimientos desarrollados en condiciones de velocidad variable, la evolución de la microestructura, partiendo de una interfaz plana, estable linealmente, hacia una celular regular y luego irregular. Los sucesivos cortes en los que se practican las observaciones nos proveen además de un mapa de microsegregación

completo del crecimiento.

II. Procedimiento Experimental

Las muestras fueron crecidas en un aparato del tipo de Bridgman de cámara móvil y doble espira de calentamiento^(12,19). El sistema de movimiento y control de posición del horno está basado en un motor paso a paso con una caja reductora, con lo que se obtienen velocidades en el rango de 0-10 $\mu\text{m s}^{-1}$. La posición real se obtiene utilizando un LVDT, enviando la información a un controlador basado en una PC, resultando en una precisión de $\pm 0.1 \mu\text{m s}^{-1}$.

Las temperaturas en la muestra son determinadas mediante dos termocuplas tipo K incluídas previamente, mientras que las lecturas son leídas utilizando un sistema de adquisición de datos junto con un preamplificador multiplexor de bajo ruido. El gradiente térmico fue fijado en 2.5 K mm^{-1} , lo que permitió tomar la velocidad como parámetro de control del problema.

La aleación fue preparada partiendo de Al y eutéctico Al-33.2 wt% Cu de 99.99% de pureza, fundidos en proporciones adecuadas bajo atmósfera de Ar. Luego los prelingotes fueron obtenidos por depresión en el interior de un tubo de cuarzo de 8 mm de diámetro por 250 mm de longitud, pintado internamente con una pintura de base grafito.

Las experiencias fueron planteadas de modo de obtener primero una estructura de solidificación estable para luego cambiar el valor de la velocidad y permitir que el sistema cambie hacia otra microestructura que le sea más conveniente. Para asegurar la estabilidad de la microestructura debía esperarse tiempos superiores a los de relajación del sistema. Estos tiempos deberán ser del orden de^(6,9)

$$\tau = \frac{D_L}{kV^2} \quad (1)$$

donde D_L es el coeficiente de difusión de soluto en el líquido, k es el coeficiente de partición de la aleación binaria y V es la velocidad de avance de la interfaz.

Una vez obtenidas las condiciones adecuadas de solidificación, la interfaz es templada utilizando un flujo coaxial de agua. Las muestras son seccionadas longitudinalmente para observar la morfología de la interfaz Sólido-Líquido y luego transversalmente, por medio de sucesivos cortes y secuencias de pulido, para estudiar la evolución de la microestructura durante el crecimiento. El pulido fue desarrollado por medios mecánicos y electrolíticos y el ataque químico se realizó con una solución de 5 ml H_2O + 5 ml HNO_3 + 5 ml HCl + 5 ml HF al 33%. La combinación de pulido mecánico y electrolítico nos proveyó de cortes sucesivos de aproximadamente 200 μm . El valor verdadero de la posición del corte fue medido luego de cada sesión de pulido. En la Figura 1 se puede ver representada esquemáticamente una imagen tridimensional de una sucesión de cortes transversales en una zona inicialmente celular, mientras que la Figura 2 muestra cortes transversales en una zona de celdas irregulares.

III. Resultados y Discusión

En principio, se realizaron experiencias de solidificación unidireccional a diferentes velocidades constantes, con el propósito de determinar la velocidad para la que ocurre la transición plana-celular. En este nivel de aproximación se puede recurrir al cálculo desarrollado por Mullins y Sekerka⁽⁷⁾ para la inestabilidad frente a perturbaciones infinitesimales de la interfaz inicialmente plana. De acuerdo a su análisis, la primera deformación neutral de la interfaz estará dada con una longitud de onda

$$\lambda_c = 2\pi \left(\frac{2\Gamma k D_L^2}{m(k-1)} \right)^{1/3} \frac{1}{C_0^{1/3}} \frac{1}{V_C^{2/3}} \quad (2)$$

donde m es la pendiente de líquidos en el diagrama de equilibrio, C_0 es la concentración nominal de soluto en el líquido y $\Gamma \equiv \gamma T_M / L$ es un coeficiente de capilaridad con γ la energía interfacial T_M la temperatura de fusión del material puro y L el calor latente de fusión. En la ecuación (2), V_C está dada por

$$V_C = \frac{2kD_L}{(k_S/k_L + 1)m(k-1)} \frac{G_L - LV/k_L}{C_0} \quad (3)$$

donde k_S y k_L son las conductividades térmicas del sólido y del líquido respectivamente.

Utilizando la expresión (3) para un gradiente $G_L = 2.5 \text{ K mm}^{-1}$, hallamos una velocidad umbral teórica para la transición plana-celular⁽¹²⁾ de $V_C = 0.58 \mu m \text{ s}^{-1}$. Experimentalmente el valor medido fue $V_{C,exp} = 0.5 \pm 0.05 \mu m \text{ s}^{-1}$.

Una vez establecida la velocidad para la transición, se generaron crecimientos que partían por debajo de dicho valor, para luego aumentarla hasta un valor de aproximadamente $5 V_C$. En estos crecimientos se pudo observar el cambio de microestructura evidenciado en la microsegregación presente en cada zona. En la parte inferior de las probetas el crecimiento era plano, de modo

que no existían rastros de microsegregación y por lo tanto el sólido resultante es homogéneo. Superado cierto umbral, la interfaz se inestabiliza, provocando una deformación del frente de solidificación y produciendo una estructura celular. El soluto, que durante el avance de la interfaz plana se acumula por delante de la misma, es atrapado por el sólido, formando una banda de mayor concentración⁽²⁰⁾. Luego de esta transición, se establece un crecimiento celular, que debido a las condiciones de solidificación evoluciona en principio hacia una microestructura más desordenada, como puede notarse en la serie de micrografías de la Figura 1. A pesar de la baja concentración de la aleación utilizada, podemos notar precipitación de eutéctico en las paredes celulares. Se puede notar además que la formación de estructuras irregulares es a partir de la desaparición de algunas zonas en las paredes celulares. Esta evolución estaría vinculada con una disminución local de composición en la pared celular, es decir que no contarían en algunas zonas con composición eutéctica. Por lo tanto, localmente, el crecimiento lateral de las celdas, estaría desarrollado en una zona de alta composición (no eutéctica) y con un muy bajo gradiente térmico, de tal modo que en esa zona, el crecimiento sería inestable localmente.

Otra zona de interés puede apreciarse en la zona de celdas irregulares, donde existen estructuras que se mantienen en forma y tamaño durante el crecimiento unidireccional, tal como muestra la Figura 2. Llamativamente, no existe una simetría aparente, sino que la microestructura se conservaría para favorecer la estabilidad de las estructuras vecinas. Observar que en el pasaje de las dos primeras micrografías de la serie (las dos inferiores) parece evidente un mecanismo nodal, similar al responsable de la selección del espaciado en el frente de solidificación durante la transición plana-celular⁽⁴⁾. Este efecto fue observado en general en otras zonas de las probetas, como mecanismo generador de una nueva pared celular.

De este modo podemos asociar un mecanismo similar al nodal para generar nuevas paredes celulares. De algún modo, la curvatura local de la interfaz permite un aumento local de la concentración, hasta llegar a ser eutéctica. Una vez que este núcleo se estabiliza sirve de anclaje para la formación de las paredes celulares. Este efecto es análogo al que se produce durante la selección del espaciado celular durante la transición plana-celular.

Por otro lado, la desaparición de las paredes para evolucionar hacia celdas inestables, parece ocurrir por un mecanismo diferente, ya que la disminución en la concentración local permite algún tipo de inestabilidad durante el crecimiento lateral de las celdas, como fue citado anteriormente y se muestra en la Figura 1.

De todos modos, ninguno de estos dos efectos son considerados normalmente en los modelados teóricos o numéricos de la dinámica de la interfaz sólido-líquido. La razón parece estar relacionada con que estos modelos necesitan de algún tipo de simetría para permitir la resolución del sistema de ecuaciones vinculada con el

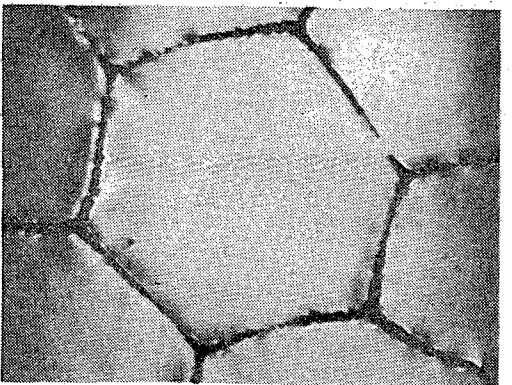
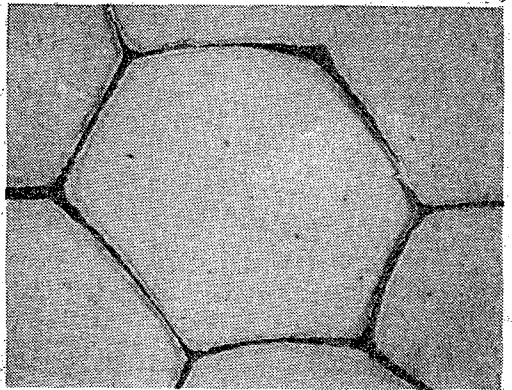
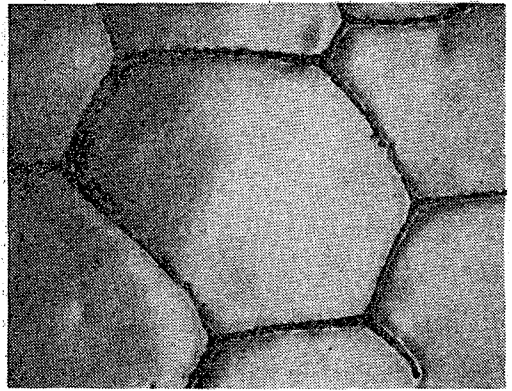
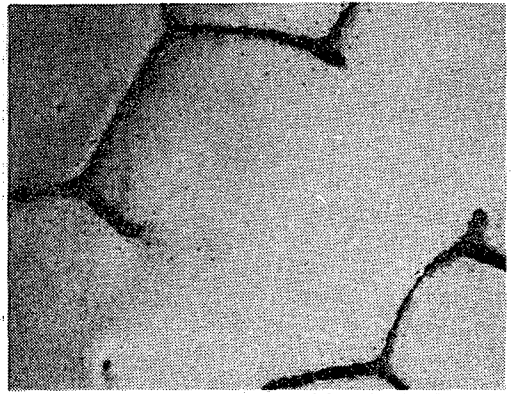
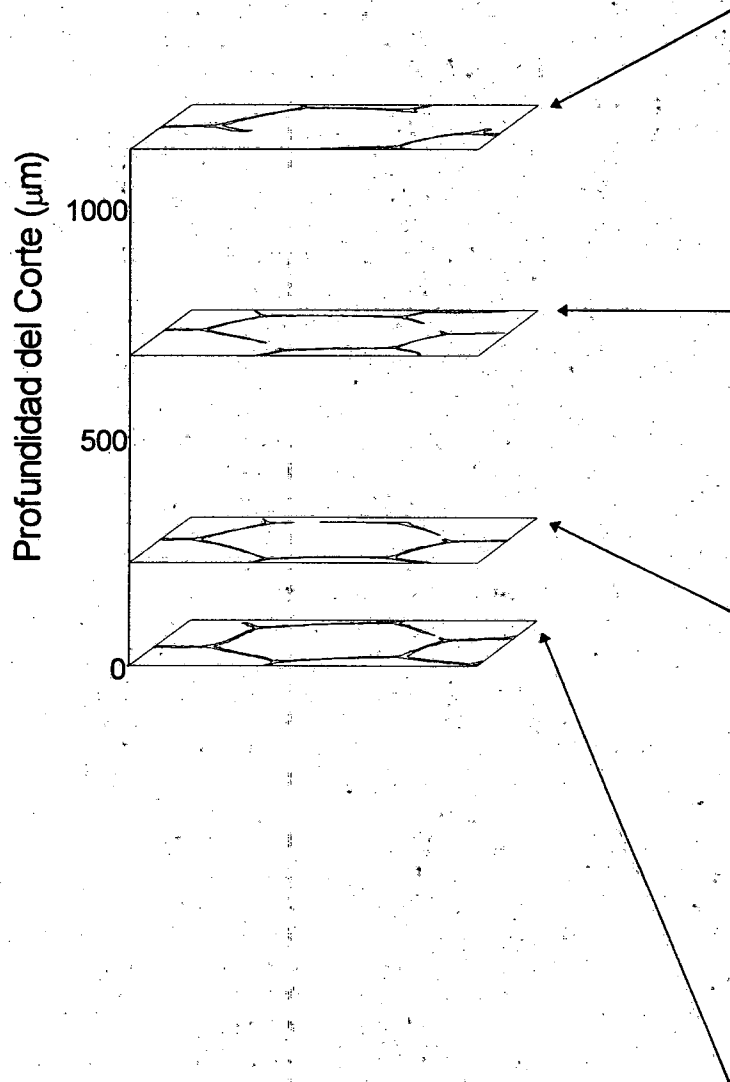


Figura 1: Secuencia de transformación de una estructura celular en celdas irregulares. El crecimiento es de abajo hacia arriba. (200X)

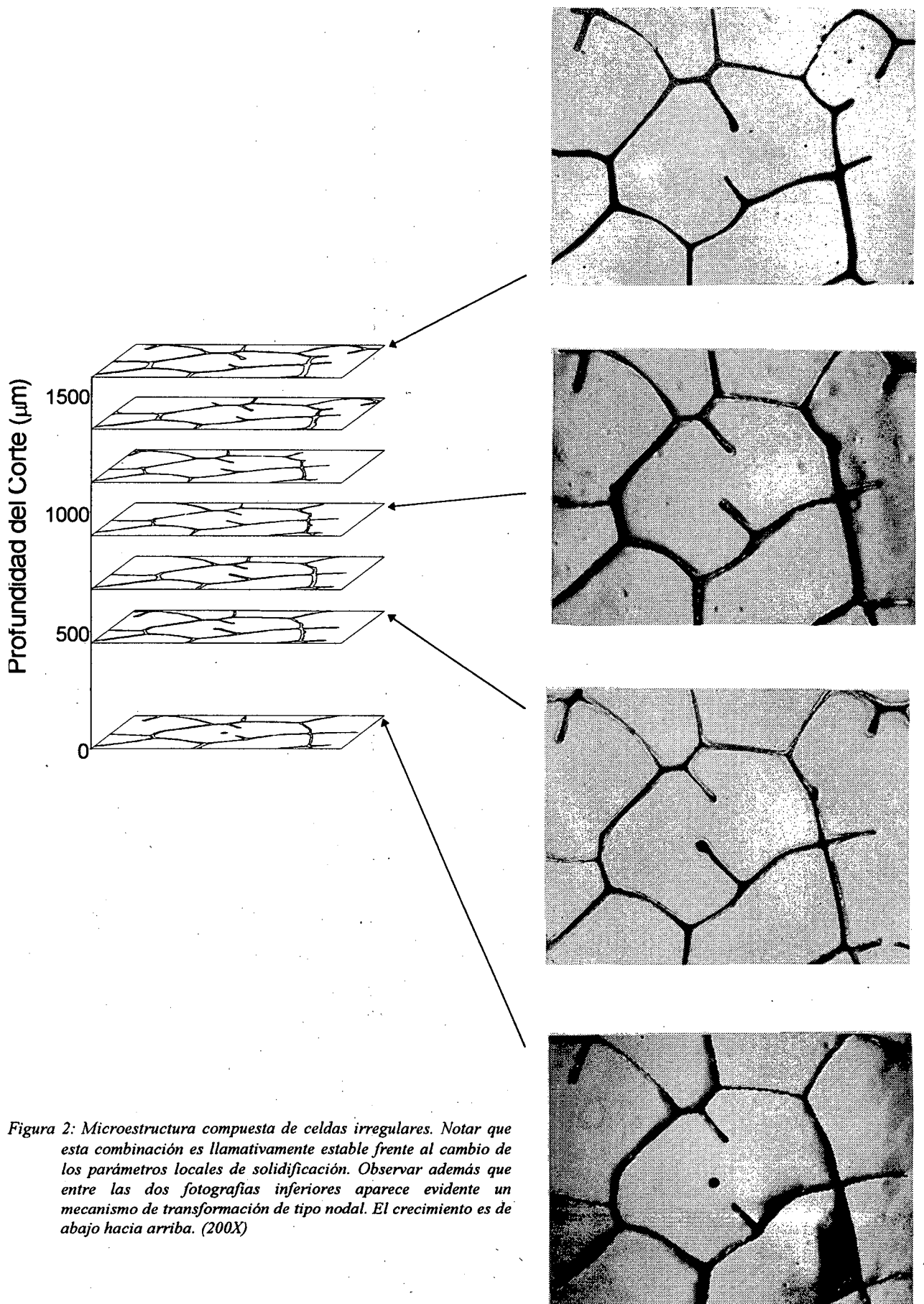


Figura 2: Microestructura compuesta de celdas irregulares. Notar que esta combinación es llamativamente estable frente al cambio de los parámetros locales de solidificación. Observar además que entre las dos fotografías inferiores aparece evidente un mecanismo de transformación de tipo nodal. El crecimiento es de abajo hacia arriba. (200X)

proceso. Es claro que al tener en cuenta este tipo de simetrías se está despreciando la dinámica de las microestructuras irregulares, como así también los efectos cooperativos en los crecimientos cristalin dendríticos.

IV. Conclusiones

Fueron llevados a cabo crecimientos unidireccionales con la aleación Al-0.5 %Cu, que es un sistema FCC con interfaz rugosa. El trabajo fue desarrollado para diferentes evoluciones en la velocidad de avance de la interfaz Sólido-Líquido, V , para un valor seleccionado del gradiente térmico, G_L . En primera instancia, los crecimientos se realizaron a diferentes velocidades constantes, de modo de revelar la microestructura resultante en función de la velocidad de avance de la interfaz. Se pudo, en esta circunstancia, determinar la velocidad para la que ocurre la transición plano-celular, $V_{C,exp}$. El resultado está en buen acuerdo con el esperado teóricamente.

A continuación, se desarrollaron crecimientos que partían de velocidades menores a $V_{C,exp}$ para asegurar una interfaz plana de solidificación, y luego eran acelerados. Esto ocasiona un cambio en la microestructura que se ve reflejada en la probeta en diferentes cortes paralelos y normales a la dirección de crecimiento.

Del análisis de la microestructura es posible determinar que los mecanismos que favorecen la formación o desaparición de paredes celulares que permiten la selección del espaciado es similar a los observados en el frente mismo de solidificación, cosa que debe ser posible si se tiene en cuenta que el crecimiento se da no solo hacia adelante sino también lateralmente, O sea que pueden ser explicados en base al grado de sobreenfriamiento constitucional local ($G_L V^1$) respecto a la dirección de la normal en ese punto en la interface.

Esto permite además aclarar la aparición de microestructuras que siendo irregulares, son en realidad morfológicamente más estables. En principio, los detalles microestructurales promedios, tales como espaciado, radio de curvatura, etc, pueden ser estudiados mediante distintos modelos de solidificación, mientras que la desaparición o formación de paredes celulares responde a los parámetros locales de solidificación. Estas estructuras no pueden ser explicadas por los modelos de solidificación mas usualmente utilizados ni aparecen en los modelados de microestructuras debido a que estos modelos tienen asociados algún tipo de simetría para favorecer las condiciones de cálculo.

Agradecimientos: Este trabajo fue desarrollado en el IFIMAT y soportado económicamente por la CIC IPBA, el CONICET y la SeCyT de la Universidad Nacional del Centro de la Provincia de Buenos Aires.

Referencias

- 1 - R. Trivedi and W. Kurz: *Acta Metall. Matter.* **42** (1994) 15.
- 2- M. C. Flemings and R. Meharabian: *Solidification*, Ch. 10: Segregation in Castings and Ingots, ASM (1971) 311.
- 3- M. C. Flemings: *Solidification Processing*, McGraw Hill, New York (1974) 328.
- 4- H. Biloni: *Physical Metallurgy*, Ch. 9: Solidification, R. W. Cahn and P. Haasen eds. (1983) 477.
- 5- J. S. Langer: *Rev. Mod. Phys.* **52** (1980) 1.
- 6- W. A. Tiller, J. W. Rutter, K. A. Jackson and B. Chalmers: *Acta Metall.* **1** (1953) 428.
- 7- W. W. Mullins and R. F. Sekerka: *J. Appl. Phys.*: **35** (1964) 444.
- 8- D. Wollking and L. Segel: *Phil. Trans. Roy. Soc. London* **268** (1970) 351.
- 9- S. de Cheveigné, C. Guthman and M. M. Lebrum: *J. Phys.* **47** (1986) 2095.
- 10- M. A. Eshelman and R. Trivedi: *Acta Metall.* **35** (1987) 2443.
- 11- S. de Cheveigné, C. Guthman, P. Kurowski, E. Vicente and H. Biloni: *J. Crystal Growth* **92** (1988) 616.
- 12- O. Fornaro and H. Palacio: "Planar to cellular transition during directional solidification of Al-0.5 wt.% Cu", *Scripta Metall. Matter.* (en prensa).
- 13- D. A. Kessler, J. Koplic and H. Levine: *Adv. Phys.* **47** (1988) 255.
- 14- L. Ungar and R. Brown: *Phys. Rev.* **B29** (1984) 1367.
- 15- G. McFadden and S. Coriell: *Physica D12* (1984) 253.
- 16- L. Ungar and R. Brown: *Phys. Rev.* **B31** (1985) 5931.
- 17- A. Wheeler, W. Boettinger and G. McFadden: *Phys. Rev* **E47** (1993) 1893.
- 18- J. Warren and W. Boettinger: *Acta Metall. Matter.* **43** (1995) 689.
- 19- O. Fornaro and H. Palacio: *Scripta Metall. Matter.* **31** (1994) 1265.
- 20- W. Kurz and D. J. Fisher: *Fundamentals of Solidification*, Third Ed. Trans Tech Publications (1986) 66.