

ESTABILIDAD DE LA INTERFAZ DE LA ALEACION Al - 1% Cu EN EL LIMITE DEL SOBREENFRIAMIENTO CONSTITUCIONAL

O. Fornaro, H. Palacio*

*Instituto de Física de Materiales Tandil, Facultad de Ciencias Exactas,
Universidad Nacional del Centro de la Provincia de Buenos Aires, Pinto 399, 7000 Tandil.*

H. Biloni*

*Laboratorio de Entrenamiento Multidisciplinario para la Investigación Tecnológica (LEMIT),
Comisión de Investigaciones Científicas, 52 entre 121 y 122, 1900 La Plata.*

El objetivo de este trabajo fue hallar experimentalmente los parámetros críticos de la solidificación G (Gradiente en el líquido) y R (Velocidad de avance de la interfaz) para los cuales se produce la transición plana-celular en el sistema Al-1% Cu y verificar la correspondencia entre los modelos teóricos existentes: Sobreenfriamiento Constitucional¹ (CS) y de perturbaciones de Mullins-Serferka o CS Modificado² (CSM).

Para ello se han realizado experiencias de solidificación unidireccional, utilizando un sistema de crecimiento vertical. Medidos G y R , el crecimiento es "templado" para poder observar, por medio de técnicas metalográficas y microscopía óptica, la morfología de la interfaz.

Los resultados obtenidos indican que la transición se produce según la predicción del modelo (CSM). Se midió la transición para $(G/R) = 8.66 \pm 0.63 \times 10^5 \text{ }^\circ\text{C cm}^2$, 2% debajo del valor esperado teóricamente.

INTRODUCCION

En sistemas metálicos el crecimiento del sólido desde el líquido tiene usualmente morfología celular o dendrítica. Morfología plana puede observarse durante un crecimiento estable. Rutter-Chalmers presentaron una teoría cualitativa acerca de la aparición de las inestabilidades de la interfaz. Posteriormente, Tiller y colaboradores¹ presentan la parte cuantitativa de esa teoría, denominada Sobreenfriamiento Constitucional (CS). Dicho criterio de estabilidad se puede escribir como³:

$$(CS) \equiv C_o \leq \frac{Dk}{-m(1-k)} (G/R) \quad [1]$$

donde m es la pendiente de la línea de líquidos del diagrama de equilibrio, k es el coeficiente de partición del equilibrio y D es el coeficiente de difusión de soluto en el líquido.

Mullins-Sekerka² estudiaron más a fondo las inestabilidades de la interfaz Sólido-Líquido (S-L), ampliando al mismo tiempo el sistema físico vinculado al modelo de CS. Partiendo de una perturbación inicial arbitraria, la interfaz será estable o inestable de acuerdo a si dicha perturbación decrece o crece con el tiempo. Este tratamiento brinda una condición de es-

tabilidad que, en las cercanías de la zona constitucional, se puede escribir como una aproximación, que denominaremos Criterio CS Modificado³ (CSM):

$$(CMS) C_o \leq \frac{Dk}{-m(1-k)} \frac{-2k_L}{k_s+k_L} (G/R) + \frac{Dk}{-m(1-k)} \frac{L}{k_s+k_L} [2]$$

donde k_L , k_s representan las conductividades térmicas en el Líquido y en el Sólido.

Teniendo en cuenta las consideraciones anteriores, el presente trabajo está centrado en la realización de crecimientos unidireccionales de la aleación Al-1% Cu en el rango de muy bajas velocidades ($R < 10^{-4} \text{ cm seg}^{-1}$) y altos gradientes de temperatura en el líquido ($G > 30 \text{ }^\circ\text{C cm}^{-1}$) con el fin de hallar experimentalmente, las condiciones críticas de la transición plana-celular en el límite de la estabilidad constitucional. Esto constituye una primera aproximación al desarrollo de un sistema experimental que permite determinar el carácter subcrítico de la transición plana-celular en sistemas metálicos, tal como lo predice S. de Cheveigne^{4,5}. Para este propósito también se encuentra en estudio un modelo teórico de solidificación celular-dendrítica que utiliza un método de cálculo similar al de Kurz-Fisher⁶ pero mejora el sistema físico incorporando efectos capilares en la interfaz y conductividades térmicas en el líquido y el sólido distintas.

* Investigador CIC

PARTE EXPERIMENTAL

Para la preparación de los prelingotes de la aleación Al-1% Cu se partió de Al y eutéctico Al-33.2% Cu de pureza 99.99%. La colada se realizó en moldes de grafito. En la solidificación unidireccional de los prelingotes se utilizó un sistema de horno vertical móvil de doble espira que aplica un concepto similar al de válvula térmica^{2,7}. Se trata de dos hornos a temperatura y distancia fija que se desplazan verticalmente a velocidad constante (del orden de 10^{-4} cm seg^{-1}). Cada experiencia comienza con la fusión del prelingote para realizar una curva de enfriamiento y determinar correctamente la temperatura de líquidos de la aleación. Luego de esto se funde nuevamente la muestra. La medición se logra a través de una termocupla móvil tipo K que se maneja desde la parte superior del equipo. La posición de la misma se conoce gracias a la implementación de un sistema de Vernier. Con ella podemos determinar G y, en sucesivas mediciones, R. Una vez logradas las condiciones buscadas, el espécimen es templado, es decir solidificado muy rápidamente, rompiendo además la condición inicial de unidireccionalidad. Estas probetas fueron seccionadas longitudinalmente utilizando un disco de diamante y pulidas y atacadas con el reactivo Keller Fuerte: HCl (15%), HNO₃ (25%) para detectar la posición de la interfaz. Para observar detalles microestructurales se realizó pulido mecánico hasta pasta de diamante de 0.25 μm y seguido de pulido electrofítico con 2-butoxi-etanol (80%), glicerina (10%) y ácido perclórico (10%) a 33 V y temperatura del baño 5 °C. El revelado se realizó con Keller diluido: H₂O (90%), HNO₃ (5%), HCl (3%) y HF (10%).

RESULTADOS Y DISCUSION

En la Tabla I se resumen los valores medidos de R y G, el valor calculado de G/R a partir de ellos y el tipo de morfología del frente de solidificación, para el sistema Al-1% Cu.

En la Fig. 1 se representa el valor crítico para la variable (G/R) de acuerdo a los modelos de CS y CSM (Ecuación [1] y [2]) para distintas concentraciones de Cu. En el mismo también colocamos los puntos experimentales para el sistema Al-1% Cu que corresponden a este trabajo y para distintas concentraciones de Cu extraídos de la bibliografía^{8,9}.

Las micrografías de las Fig. 2 y 3 corresponden a los crecimientos (6) y (8) de la Tabla I. La Fig. 2 es un crecimiento con frente plano de solidificación.

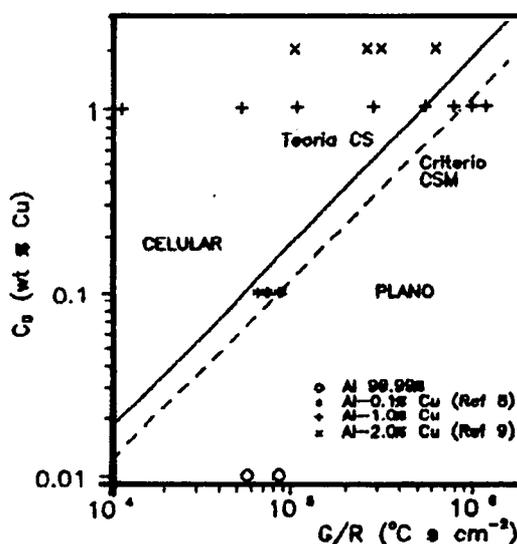


Figura 1: C_0 vs G/R

Al-1% Cu	R (cm seg^{-1})	G ($^{\circ}\text{C cm}^{-1}$)	G/R ($^{\circ}\text{C seg cm}^{-2}$)	frente
(1)	$1.17 \cdot 10^{-3} \pm 0.03$	13.04 ± 0.3	$1.111 \cdot 10^4 \pm 0.0541$	dendritas
(2)	$2.79 \cdot 10^{-4} \pm 0.01$	29.10 ± 0.6	$1.043 \cdot 10^5 \pm 0.0200$	celdas
(3)	$7.13 \cdot 10^{-5} \pm 0.05$	38.13 ± 0.8	$5.348 \cdot 10^5 \pm 0.1500$	plano+celdas
(4)	$6.73 \cdot 10^{-4} \pm 0.20$	34.50 ± 0.7	$5.126 \cdot 10^4 \pm 0.2560$	dendritas
(5)	$3.40 \cdot 10^{-5} \pm 0.17$	39.10 ± 0.7	$1.149 \cdot 10^6 \pm 0.0778$	plano
(6)	$3.80 \cdot 10^{-5} \pm 0.14$	36.60 ± 1.4	$9.633 \cdot 10^5 \pm 0.7234$	plano
(7)	$5.60 \cdot 10^{-5} \pm 0.12$	15.40 ± 0.3	$2.750 \cdot 10^5 \pm 0.1125$	celdas
(8)	$5.25 \cdot 10^{-5} \pm 0.16$	40.40 ± 0.7	$7.700 \cdot 10^5 \pm 0.3696$	plano+celdas

Tabla I: Valores medidos de R y G y calculados de G/R para los crecimientos de Al-1% Cu. Morfologías observadas de la interfaz.

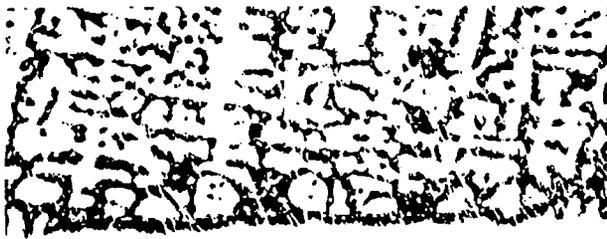


Figura 2: Crecimiento de Al-1%Cu con frente plano de solidificación. 100X



Figura 3: Crecimiento de Al-1%Cu con frente de solidificación inestable. 60X.

Podemos ver que no existen inestabilidades manifestadas en el sólido templado. Las deformaciones de la interfaz que aparecen en la foto son producto del templado, ya que aparecen en la zona que corresponde al líquido enfriado rápidamente y son producto del cambio de las condiciones de extracción calórica que originan la variación de una distribución de soluto homogénea por otra dendrítica de espaciado muy fino. En la Fig. 3 podemos observar un crecimiento inestable. Durante el crecimiento estuvieron dadas todas las condiciones para que alguna longitud de onda pudiera crecer con el tiempo. Esto queda evidenciado en la penetración de soluto que se puede apreciar en la micrografía. Este crecimiento está constituido por grandes celdas. El material atrapado entre las ramas celulares es Al-Al₂ Cu que es la

composición que corresponde a la fracción solidificada máxima, tal como se observa microscópicamente.

De acuerdo a estas observaciones, podemos acotar la zona en que se produce la transición plana-celular, que nos da un valor experimental para (G/R) de $8.66 \pm 0.63 \times 10^5 \text{ } ^\circ\text{C s cm}^{-2}$. Los valores críticos teóricos que se desprenden de [1] y [2] han sido extractados en la TABLA II, junto con el valor experimental aportado por este trabajo.

	(G/R) CS	(G/R) MED	(G/R) CSM	
Al - 1% Cu	$5.3238 \cdot 10^5$	$8.66 \pm 0.63 \cdot 10^5$	$8.8384 \cdot 10^5$	$^\circ\text{C s cm}^{-2}$

Tabla 2: Valores críticos para (G/R)

Para Al-1% Cu, el valor medido para la transición está 62% por encima del valor que arroja la Teoría CS y 2% por debajo de la aportada por la Teoría de perturbaciones de Mullins y Sekerka. Sato y colaboradores⁸, en experiencias con el sistema Al-0.1% Cu, arriban a consideraciones similares afirmando que, de acuerdo a sus aproximaciones, la transición se produce de acuerdo al modelo CSM y da una relación entre ambas teorías de aproximadamente el 60%.

CONCLUSIONES

En este trabajo se han estudiado los procesos físicos vinculados con la solidificación controlada de aleaciones binarias diluidas en condiciones de equilibrio y cercanas a la Estabilidad Constitucional. Para ello se desarrollaron experiencias de crecimiento unidireccional con la aleación FCC: Al-1% Cu en las cercanías de la transición plana-celular, concluyéndose que:

- 1) De acuerdo a las teorías lineales de estabilidad, la transición plana-celular se puede estudiar combinando las variables del crecimiento G y R en la forma del cociente (G/R).
- 2) El valor crítico medido para el sistema Al-1% Cu fue:

$$(G/R) = 8.66 \pm 0.63 \cdot 10^5 \text{ } ^\circ\text{C seg cm}^{-2}$$

- 3) De la comparación del valor crítico medido con los valores aportados por las teorías de estabilidad lineal, surge que está situado 2% debajo del aportado por CSM y 62% por encima del que nos brinda CS. La transición se produce a primer orden, según la predicción del modelo [CSM].

AGRADECIMIENTOS

Al PID del CONICET N° 3-155400/88 y a la CICPBA.

REFERENCIAS

- 1) W. A. Tiller, K. A. Jackson, J. W. Rutter, B. Chalmers: Acta Met. 1, (1953), 428-437.
- 2) W. W. Mullins, R. F. Sekerka: J. App. Phys. 35, 2 (1964), 444-451.
- 3) O. Fornaro: Trabajo especial de Licenciatura en Física, FCE, UNCPBA, 1990.
- 4) S. de Cheveigné, C. Guthman, M. Lebrun: J. Physique 47 (1986), 2095.
- 5) S. de Cheveigné, C. Guthman, P. Kurowski, E. Vicente, H. Biloni, J. Crystal Growth 92, (1988), 616-628.
- 6) W. Kurtz, D. J. Fisher, Acta Met. 29, (1981), 11-20.
- 7) W. A. Tiller, J. W. Rutter: Can. J. Phys., 34 (1956), 96.
- 8) T. Sato Y. Shibata G. Ohira: J. Crystal Growth 40, (1977), 69-77.
- 9) H. Palacio M. Solari H. Biloni, J. Crystal Growth 73, (1985), 369-378.

CEILAP
CITEFA - CONICET
ZUFRIATEGUI Y VARELA
1603 - VILLA MARTELLI
REPUBLICA ARGENTINA