

# ANÁLISIS DIMENSIONAL DE LA TRANSICIÓN DE ESTRUCTURA COLUMNAR A EQUIAXIAL EN ALEACIONES ALUMINIO – COBRE Y PLOMO - ESTAÑO

S.F. Gueijman<sup>2</sup>, A.E. Ares<sup>1,2\*</sup>, and C.E. Schvezov<sup>2</sup>

*1 CONICET – Investigadora Asistente*

*2 Facultad de Ciencias Exactas, Químicas y Naturales, Universidad Nacional de Misiones. Félix de Azara 1552. 3300 Posadas-Misiones.*

[aares@fceqyn.unam.edu.ar](mailto:aares@fceqyn.unam.edu.ar)

La importancia de los estudios de solidificación direccional está bien reconocida a través de las investigaciones científicas sistemáticas realizadas para entender las características de solidificación de las aleaciones. Tales estudios proveen una información fundamental importante acerca de la morfología de la interfase y la redistribución de soluto durante la solidificación. La mayoría de las aleaciones crecen bajo condiciones, que llevan a alcanzar interfases dendríticas. Por esta razón, un considerable esfuerzo teórico y experimental ha sido realizado para entender las características de la interfase dendrítica que crece bajo condiciones de solidificación controlada. El tratamiento que puede explicar cuantitativamente todos los datos experimentales disponibles y que incorpore correctamente la física del problema no está aún disponible. El propósito del presente trabajo es el de realizar un análisis teórico del crecimiento columnar y equiaxial y del espaciamiento dendrítico bajo diferentes condiciones de solidificación. Los parámetros básicos que se utilizan en el presente trabajo son aquellos que caracterizan a un dado sistema de aleación en estudio. Seguidamente, definimos parámetros adimensionales, que nos sirvan para formular el resultado final de nuestro problema independientemente del sistema específico de aleación en estudio. Finalmente, presentamos las importantes relaciones funcionales de nuestro estudio, que tienen en cuenta la interpretación física de los resultados obtenidos en el presente trabajo.

The importance of directional solidification studies has been well recognized since the early systematic scientific investigations were carried out to understand the solidification characteristics of alloys. Such studies provide valuable fundamental information about the interface morphology and solute redistribution during solidification. A majority of alloys grow under conditions, which give rise to dendritic interfaces. For this reason, considerable theoretical and experimental attempts have been made to understand the characteristics of dendritic interface growth carried out under controlled solidification conditions. A treatment which can quantitatively explain all the available experimental data and which correctly incorporates all the physics of the problem is not available as yet. It is the purpose of this paper to present a theoretical analysis of equiaxed and columnar growth and dendrite arm spacing under different sample solidification conditions. The basic parameters that we shall use throughout this paper are those that characterize the given alloy system under study. Subsequently, we shall define dimensionless parameters, which will enable us to formulate our problem such that the final results are independent of any specific alloy system. Finally, we shall present the important functional relationships of our study, which discusses the physical interpretation of the results obtained in the present work.

L'importance d'études de solidification directionnelles a été reconnue bien puisque les investigations scientifiques, systématiques et premières ont été exécuté pour comprendre le solidification solidification d'alliages. Telles études fournissent l'information fondamentale valable du redistribution de morphologie d'interface et solute pendant redistribution. Une majorité d'alliages grandit sous les conditions, qui engendre les interfaces à dendritic. Pour cette raison, les tentatives considérables, théoriques et expérimentales ont été faites comprendre que le characteristics de croissance d'interface de dendritic a exécuté les conditions de solidification en ordre. Un traitement qui peut expliquer quantitativement toutes les données expérimentales disponibles et qui incorpore correctement toute la physique du problème est pas disponible jusqu'ici. Il est le but de ce papier pour présenter une analyse théorique de equiaxial et columnar le bras de croissance et dendrite l'espacement de sous les conditions de solidification d'échantillon différentes. Les paramètres fondamentaux que nous utiliserons à travers ce papier sont ces que caractérise le système d'alliage donné à l'étude. Par la suite, nous définirons les paramètres de adimensional, qui rendront capable nous formuler notre problème tel que les résultats finaux sont indépendants de système d'alliage spécifique. Finalement, nous présenterons les rapports fonctionnels importants de notre étude, qui discute l'interprétation physique des résultats obtenus dans le travail actuel.

\* Autor a quién debe dirigirse la correspondencia.  
202- ANALES AFA Vol. 16

## I. INTRODUCCIÓN

Los estudios de solidificación direccional proporcionan información valiosa acerca del efecto del campo escalar de temperaturas y su distribución, de las velocidades de enfriamiento, los gradientes de temperatura y del efecto de las velocidades de las interfases que separan al sólido de la región pastosa y aquellas que separan la región pastosa de la región líquida en la macroestructura final de una aleación [1,2].

En estudios de solidificación direccional los números adimensionales son importantes a fin de correlacionar los valores experimentales de las magnitudes físicas que son relevantes para la descripción de los procesos de solidificación [3]. Los números adimensionales son también importantes para establecer similitudes dinámicas y geométricas entre diferentes experimentos de laboratorio así como en la actividad industrial. Más aún, diferentes experimentos realizados por experimentadores diversos pueden ser comparados mediante los números adimensionales. Finalmente, los números adimensionales también son muy útiles en la modelización fisicomatemática y en las simulaciones numéricas del proceso de solidificación.

A fin de comprender el proceso de solidificación es necesario describir parámetros relevantes que caractericen a una dada aleación: A partir de allí es necesario definir los parámetros tendientes a formular leyes generales las cuales deberían ser válidos para cualquier aleación. En el presente análisis se consideran tres parámetros relevantes, los cuales son, a saber, la velocidad de enfriamiento en la fase líquida, el tiempo de solidificación local y la temperatura Liquidus, los cuales caracterizan a una dada aleación. Un número adimensional permite relacionar estos tres parámetros, y otro número adimensional puede relacionar las dimensiones geométricas de la macroestructura con las propiedades físicas de la aleación tales como la densidad. En el presente trabajo se analizan dos de estos números adimensionales  $Gu$  y  $P$  los cuales fueron convenientemente definidos y cuyos valores se calcularon a partir de datos experimentales para el sistema aluminio-cobre.

## II. MATERIALES Y MÉTODOS

Se solidificaron desde la base inferior probetas cilíndricas de aleaciones de aluminio-cobre de 1,6 cm de diámetro y 13 cm de longitud en un equipo de solidificación direccional vertical [1,2,4]. La temperatura central de las probetas en distintos puntos equidistantes sobre el eje de simetría

longitudinal fue medida utilizando termocuplas del tipo K calibradas.

Luego de la solidificación, las probetas fueron cortadas en la dirección longitudinal, pulidas y reveladas químicamente [5] para su posterior observación óptica. La posición de la transición, ésta presente en todas las experiencias realizadas, se localizó entre los 40 a los 70 mm desde la base de la probeta.

Los granos equiaxiales fueron medidos usando la norma ASTM E112 [6], a intervalos igualmente espaciados. La región columnar fue dividida en una forma similar y el ancho y la longitud de los granos se midió directamente. En la tabla 1 se muestran los valores experimentales determinados a partir de las experiencias realizadas y que se utilizaron para la determinación de los números adimensionales.

## III. RESULTADOS

### 3.1. El número $Gu$

Las aleaciones se caracterizaron por medio de números adimensionales. El primer número adimensional dio en llamarse  $Gu$  y se definió como el producto de la velocidad de enfriamiento por el tiempo de solidificación local dividido entre la temperatura liquidus. Expresado en forma de ecuación, el número  $Gu$  está dado por:

$$Gu = \frac{\dot{T} \cdot \Delta t}{T_L} \quad [^{\circ}\text{C}\cdot\text{min} / ^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}] \quad (1)$$

donde:  $\dot{T}$  = velocidad de enfriamiento en  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$  al comienzo del cambio de fase;  $\Delta t$  es el tiempo de solidificación local en minutos y  $T_L$  es la temperatura de liquidus en  $^{\circ}\text{C}$ . Todas las variables son determinadas experimentalmente a partir de las curvas de enfriamiento ó temperatura vs. tiempo.

El número  $Gu$  es similar al número de Strouhal ( $St$ ) que es utilizado para analizar estados no estacionarios en fluidos [7]. En este caso,  $\dot{T} = dT/dt$  es la velocidad característica,  $\Delta t$  es el intervalo de tiempo característico y  $T_L$  es la dimensión característica de la aleación la cual depende de la concentración de soluto.

Se calcularon los números de  $Gu$  para 17 experimentos en aleaciones Al-Cu con rangos de concentraciones de soluto de entre 2 % en peso de Cu hasta 33.2 % en peso de cobre, utilizando velocidades de enfriamiento de entre 74.3 hasta 135.8  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . El número de  $Gu$  fue determinado

tanto para la zona columnar cuanto para la zona equiaxial de las probetas

**Tabla 1.** Valores experimentales usados en la determinación de los números Gu y  $\Pi$ .

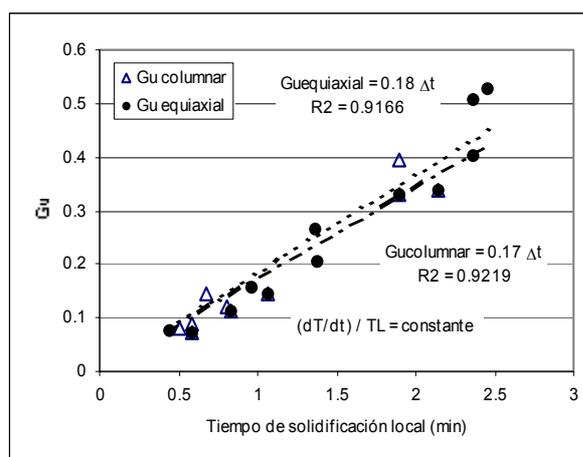
Aleación (% en peso)	$T_L$ (°C)	$T_S$ (°C)	Densidad del líquido (g/cm <sup>3</sup> ) †	Densidad del sólido (g/cm <sup>3</sup> ) ‡	Espaciamento dendrítico promedio $\lambda$ (cm)	Longitud Total (cm)	Longitud de la zona columnar (cm)	Diámetro de grano promedio (cm)
Al-2wt%Cu	655	621	2.586	2.383	0.049	13.5	5	0.32
Al-4wt%Cu	650	578	2.623	2.418	0.063	13	5.5	0.31
Al-10wt%Cu	633	548	2.740	2.528	0.055	12	4	0.35
Al-20wt%Cu	600	548	2.961	2.735	0.065	15	4	0.30
Al-33.2wt%Cu	548	548	3.314	3.066	0.075	14	7	0.25

† Densidad promedio de la aleación calculada usando la temperatura de liquidus experimental a la presión atmosférica.

‡ Densidad promedio de la aleación calculada usando la temperatura de solidus experimental a la presión atmosférica.

Ha sido encontrada una relación casi lineal entre el número de Gu y el tiempo de solidificación local que, dentro del error experimental, es casi independiente de la concentración de la aleación aunque parece depender de la macroestructura ya que una regresión lineal de los valores de Gu calculados vs.  $\Delta t$  arroja pendientes mayores en estructuras equiaxiales que en estructuras columnares.

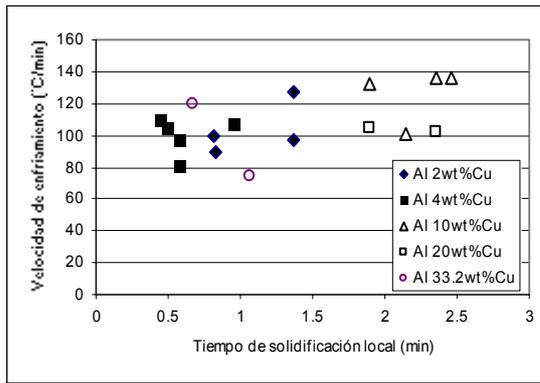
En la figura 1 se puede observar el número de Gu vs. el tiempo de solidificación local para aleaciones de aluminio con diferentes concentraciones de cobre enfriadas a diversas velocidades.



**Figura 1.** El número de Gu en función del tiempo de solidificación local para diversas concentraciones en diversas aleaciones de Al-Cu.

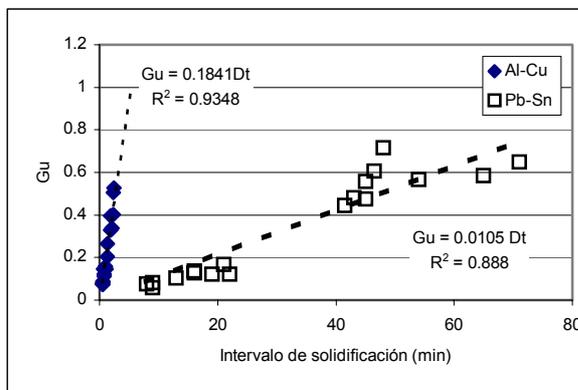
A partir de la figura 1 es posible apreciar que el número de Gu se incrementa cuando el tiempo de solidificación local  $\Delta t$  incrementa. En todos los experimentos efectuados la pendiente de la curva del número adimensional Gu como una función del tiempo de solidificación local es de casi  $0.18 \text{ min}^{-1}$  para la zona equiaxial y de  $0.17 \text{ min}^{-1}$  para la zona columnar. Estas pendientes son las inversas de constantes de tiempo  $\tau$  características para el proceso de solidificación de todas las aleaciones de aluminio-cobre en la región rica en aluminio que parece ser independiente de la concentración de soluto en el rango entre 2 % en peso de cobre y la concentración eutéctica. Así, las constante de tiempo para el proceso de solidificación de aleaciones Al-Cu en la región rica en Al es de 5.6 minutos para la zona equiaxial y cerca de 5.9 minutos para la zona columnar.

No se ha encontrado una clara dependencia entre la velocidad de enfriamiento y el tiempo de solidificación local, debido a que dos velocidades de enfriamiento diferentes al comienzo del cambio de fase pueden producir el mismo tiempo de solidificación local cuando la concentración de soluto de la aleación es la misma, como puede ser apreciado a partir de la figura 2.



**Figura 2.** Velocidad de enfriamiento en función del tiempo de solidificación local para probetas de distintas concentraciones de cobre en aleaciones de Al-Cu.

Si se comparan el número de Gu para aleaciones de Al-Cu en la región rica en aluminio con valores calculados para aleaciones de Pb-Sn en la región rica en plomo [8] se encuentran pendientes que son un orden de magnitud más pequeñas para el sistema Pb-Sn que para el sistema Al-Cu. Esto significa que las constantes de tiempo para el proceso de solidificación del aluminio-cobre es cerca del 5 % de la constante de tiempo para el sistema plomo-estaño. En la figura 3 se muestra una comparación de los valores del número adimensional Gu para probetas de aluminio-cobre y probetas de plomo-estaño.



**Figura 3.** El número de Gu en función del tiempo de solidificación local para diversas concentraciones en aleaciones de aluminio-cobre y de plomo-estaño.

Con referencia a la figura 3 es necesario advertir que los sistemas de solidificación direccional y las dimensiones geométricas de las probetas utilizados son diferentes para las aleaciones de Al-Cu que para aleaciones de Pb-Sn. Las características de las probetas de aleación Pb-Sn y las características del sistema de solidificación direccional empleado en este caso pueden ser encontrados en la referencia [8]. No se hace especulación alguna acerca de pequeñas

desviaciones de la linealidad y del origen de la dispersión en el número Gu.

Otro número adimensional Gu' es posible de ser determinado si se consideran a la velocidad de enfriamiento en °C/min al final del cambio de fase; Δt al tiempo de solidificación local en minutos y a T<sub>S</sub> como la temperatura de solidus en °C. Así como en el caso anterior, todas las variables pueden ser determinadas experimentalmente a partir de las curvas de enfriamiento ó temperatura vs. tiempo. El cálculo de dichos números adimensionales no se reproduce aquí.

Se ha tratado de relacionar el espaciamiento dendrítico primario con la expresión:  $\lambda = b \cdot \dot{T}^\gamma$  la cual ha sido sugerida como una ecuación que podría relacionar el espaciamiento dendrítico primario con la velocidad de enfriamiento, sin embargo de nuestros experimentos no es posible concluir que esta expresión sea válida para todo el rango de concentraciones. Además los valores de las constantes b y γ son bastante diferentes de aquellos valores que han sido reportados para otros sistemas de aleaciones de aluminio [9].

### 3.2. El número Π

Se han caracterizado las aleaciones por medio de otro número adimensional Π dado por la relación:

$$\Pi = \frac{R^3 \Big|_{P_L, T_L}}{(a \cdot b \cdot c) \Big|_{P_S, T_S}} \cdot \frac{\bar{\rho}_L \Big|_{P_L, T_L}}{\bar{\rho}_S \Big|_{P_S, T_S}} \quad (3)$$

donde:

a, b y c son longitudes características de la macroestructura.

R es una longitud característica de la probeta.

$\bar{\rho}_S \Big|_{P_S, T_S}$  es la densidad promedio de la fase sólida en la aleación al final del cambio de fase calculada a partir de sus elementos puros, a la temperatura de solidus T<sub>S</sub> y a la presión correspondiente.

$\bar{\rho}_L \Big|_{P_L, T_L}$  es la densidad promedio de la fase líquida en la aleación al inicio del cambio de fase calculada a partir de sus elementos puros, a la temperatura de liquidus T<sub>L</sub> y a la presión correspondiente.

El número adimensional Π fue determinado como la relación entre la masa del líquido y la masa del sólido del cual es formado. Desde el punto de vista teórico el número Π debería ser igual a uno toda

vez que en el proceso de solidificación no existe pérdida de masa y si un elipsoide de sólido de ejes principales a, b y c es formado a partir de una esfera líquida de radio R. Así, se relaciona la masa de cada fase con la densidad de cada fase y el volumen de cada fase a su correspondiente temperatura y presión. El volumen de cada fase generalmente cambia debido a que las densidades del sólido y del líquido y las temperaturas al inicio y al final de la solidificación son bastante diferentes, a menos que las densidades sean iguales y el cambio de fase ocurra isotérmicamente. El número  $\Pi$  depende entonces también de la relación entre la densidad de la fase líquida en el estado inicial del proceso de solidificación a  $T_L$  y la densidad promedio de la fase sólida al final del cambio de fase a  $T_S$ , ambos calculados a sus correspondientes presiones.

En el presente trabajo se han despreciado cambios en las presiones debidos a la altura del líquido por encima de la partícula que está en proceso de transformación. Además, toda vez que los experimentos se han realizado a la presión atmosférica local, las densidades de cada fase se calcularon a partir de las densidades de sus elementos puros a presión atmosférica normal y a las temperaturas de solidus y de liquidus, las cuales fueron determinadas experimentalmente.

El número  $\Pi$  toma en consideración la relación entre las dimensiones características del sólido a, b, c que corresponden a los ejes principales de un elipsoide de revolución y la dimensión característica R, que correspondería a una esfera de líquido a partir de la cual el elipsoide sólido es formado. Estrictamente hablando, para obtener un número  $\Pi$  igual a la unidad es necesario conocer el volumen de la fase líquida a la temperatura de liquidus y el volumen de la fase sólida a la temperatura de solidus además de el correspondiente campo de presiones existente.

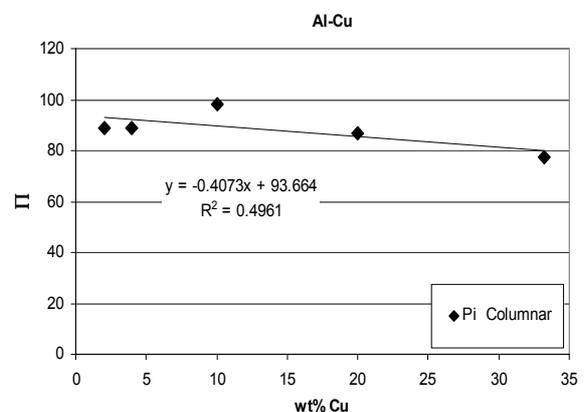
Toda vez que a partir de las mediciones metalográficas de la macroestructura de la aleación, sólo es posible conocer el volumen de un grano cristalino o el volumen promedio de un número de granos, pero no se determina experimentalmente el volumen del líquido que forma el grano antes del cambio de fase, se ha adoptado el criterio de relacionar dicho volumen con longitudes características de cada macroestructura, suponiendo que los granos cristalinos se forman a partir de un volumen de líquido dado por el volumen de la zona con una estructura característica, vale decir ya sea la zona columnar ó la zona equiaxial.. Así se ha relacionado la cantidad R con longitudes características de la macroestructura en la probeta completa, por ejemplo para probetas cilíndricas de

diámetro D y zona columnar  $L_c$ , la dimensión característica de la zona columnar  $R_c$  estará dada por  $R_c = D^2/4 \times L_c$ . Las dimensiones lineales características para un grano columnar están dadas por a, b, c donde a y b pueden ser expresadas por el espaciamiento dendrítico primario  $\lambda$  y  $c = L_c$ , de manera tal que  $a \cdot b \cdot c = \lambda^2 \cdot L_c$ .

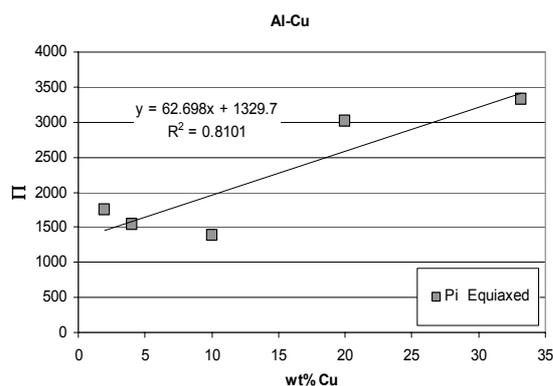
Si los granos equiaxiales tienen simetría radial se puede adoptar el criterio de que los cristales pueden ser aproximados por esferas de diámetro promedio d, de tal forma que la dimensión lineal característica del grano equiaxial es  $r = d/2$  y la aproximación del producto de los ejes principales  $a \cdot b \cdot c = r^3$  es válida. En este caso la dimensión característica  $R_e$  puede ser aproximada por  $R_e = D^2/4 \cdot L_e$  donde  $L_e$  es la longitud de la zona equiaxial y D es el diámetro de la probeta. Calculado en esta forma, el número  $\Pi$  es entonces proporcional a un número total promedio de granos en cada zona.

En las figuras 3 y 4 se muestran los valores de cálculo del número adimensional  $\Pi$  para diferentes aleaciones de Al-Cu en función de tanto la concentración de soluto cuanto de la macroestructura. Se puede observar que para todas las experiencias consideradas, los valores del número  $\Pi$  son siempre un orden de magnitud más grande para la zona equiaxial que para la zona columnar. Mas aún, el número  $\Pi$  es aproximadamente constante para la estructura columnar en todo el rango de concentraciones considerado, aunque aparenta disminuir un poco cuando la concentración de soluto se incrementa.

El número  $\Pi$  se incrementa con la concentración cuando granos equiaxiales forman la macroestructura y un valor máximo de 3316 fue determinado para la concentración eutéctica. Para el sistema de Al-Cu el número  $\Pi$  está en el rango de entre 80 y 100 para la estructura columnar y en el rango de entre 1300 a 3300 para la macroestructura equiaxial en la región rica en aluminio.



**Figura 3.** El número  $\Pi$  vs. la concentración en peso de soluto para la zona columnar del sistema Al-Cu.



**Figura 4.** El número  $\Pi$  vs. la concentración en peso de soluto para la zona equiaxial del sistema Al-Cu.

Toda vez que el número adimensional fue determinado para probetas de Al-Cu teniendo todas el mismo diámetro  $D$  y la misma longitud total  $L$ , un esfuerzo adicional deberá ser realizado a fin de determinar cambios en el número  $\Pi$  con cambios en las dimensiones de las probetas.

#### IV CONCLUSIONES

1. El número adimensional  $G_u$  muestra una relación lineal con el tiempo de solidificación local. Éste incrementa cuando el tiempo de solidificación local incrementa. El número de  $G_u$  es ligeramente diferente para la macroestructura equiaxial que para la columnar. La inversa de la pendiente de la curva  $G_u$  vs.  $\Delta t$  está relacionada con una constante de tiempo  $\tau$  para el proceso de solidificación. La constante de tiempo es menor para la solidificación de granos equiaxiales que para la zona columnar en aleaciones Al-Cu y parece ser independiente de la concentración de aleante en la región rica en Al del diagrama de equilibrio, para la cual dichas constantes fueron determinadas.
2. El número adimensional  $\Pi$  para la región rica en aluminio del sistema Al-Cu depende fuertemente de la macroestructura. Para el sistema de aleación considerado y utilizando probetas de 1.6 cm de diámetro y 13 cm de longitud, números  $\Pi$  menores a 100 corresponden a granos columnares, mientras que números  $\Pi$  mayores que 1000 corresponden a granos equiaxiales. El

número  $\Pi$  es aproximadamente constante para granos equiaxiales aunque muestra un ligero decrecimiento con el incremento de soluto. El número  $\Pi$  se incrementa cuando la concentración de soluto se incrementa cuando la macroestructura es completamente columnar.

#### Agradecimientos

Uno de los autores, A. A., expresa su agradecimiento al Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (CONICET) por el soporte financiero.

#### Referencias

- 1- Ares, A.E. and Schvezov, C.E. , Metallurgical and Materials Transactions, **31A**, 1611-1625 (2000).
- 2- Ares, A.E., Gueijman, S.F., Caram, R. and Schvezov, C.E. en: The Fourteenth International Conference on Crystal Growth in Conjunction with The Twelfth International Conference on Vapor Growth and Epitaxy, Alpes Congres, Grenoble, France, ed J. of Crystal Growth (2004).
- 3- Trivedi, R., Journal of Crystal Growth, **49** 219-232 (1980).
- 4- Ares, A.E., Caram, R. and Schvezov, C.E. en: Light Metals 2002, ed. Wolfgang Schneider, Seattle, Washington, p.p. 777-784 (2002).
- 5- Vander Voort, G.F. en: Metallography Principles and Practice, ed. ASM International New York, p.p. 528-761 (2000).
- 6- Boyer, H. E. and Gall, T. L., Metals Handbook, Desk Edition. American Society for Metals, **35**, p.p. 18-19 (1990).
- 7- Yavorski, M.M., Detlaf, A.A. en: Manual de Física, ed. Mir Moscú, p. 345 (1977).
- 8- Ares, A.E, Transición Columnar a Equiaxial en aleaciones Plomo-Estaño. Tesis de Maestría. UNSaM-CNEA. Buenos Aires, Argentina. Octubre de 1997.
- 9- Jones, H., Mater. Sci. Eng., **65**, 145-56 (1984).