INESTABILIDADES MORFOLOGICAS EN LA SOLIDIFICACION UNIDIRECCIONAL DE ALEACIONES: LA RELACION CON LAS SUBESTRUCTURAS DE SEGREGACION

O. Fornaro, H. Palacio[(1)] y H. Biloni[(1,2)]

IFIMAT-CICPBA, Universidad Nacional del Centro
Pinto 399 (7000) Tandil, Argentina, ofornaro@exa.unicen.edu.ar

(1) Investigador CICPBA, hpalacio@exa.unicen.edu.ar
(2) LEMIT-CIC, Calle 52 e/ 121 y 122 (1900) La Plata, Argentina, lemit@ibm.net

Resumen:

En este trabajo se presentan resultados experimentales tendientes a clarificar el desarrollo de las microestructuras de microsegregación en lo referente a la inestabilidad subcrítica de la interfaz S-L plano-celular y a los mecanismos de inestabilidad de las paredes celulares que determinan la formación de subestructuras celulares bidimensionales, hexagonales, irregulares y el crecimiento cooperativo de dendritas.

Introducción:

Durante la solidificación unidireccional, cuando la morfología de la interfaz Sólido-Líquido (S-L) es microscópicamente plana, el perfil de composición en el sólido puede variar sólo en la dirección de crecimiento. Sin embargo, aún si el flujo de calor está siendo controlado de modo tal que sea unidireccional y las isotermas son planas, una interfaz inicialmente plana puede ser inestable frente a pequeñas fluctuaciones en su forma. Las variaciones en la composición lateral de la interfaz pueden ser inducidas en el sólido en una escala mucho menor que el ancho de las muestras. La teoría de inestabilidades morfológicas define las condiciones para las cuales una inestabilidad puede ocurrir y una interfaz plana puede ser inestable[(1)].

Un extenso trabajo ha sido desarrollado por diversos autores tanto en aleaciones metálicas diluidas como en aleaciones orgánicas transparentes. Según se incrementa la velocidad de avance de la interfaz (V) para una dada concentración inicial (C_0) y gradiente térmico (G_L) son observadas diferentes transiciones en la estructura. Podemos detectar los siguientes estados discretos[(2)]: (i) Interfaz plana; (ii) nodos o depresiones en la interfaz S-L; (iii) celdas bidimensionales o elongadas; (iv) celdas regulares o hexagonales; (v) celdas distorsionadas o irregulares; (vi) celdas dendríticas o crecimiento dendrítico cooperativo.

En este trabajo presentamos resultados obtenidos en el sistema f.c.c. Al-Cu diluido, particularmente en *Al-0.2 %Cu* y *Al-0.5 %Cu* para condiciones variables del parámetro (G_L/VC_0) obtenidas a partir de mantener constante G_L y haciendo variar V a lo largo de la experiencia. Esto tuvo como consecuencia la aparición de las diferentes subestructuras de segregación mencionadas anteriormente. Las inestabilidades detectadas en las paredes intercelulares aparecen relacionadas con el control y la formación de nodos de soluto, así como la evolución de la estructura a través de las distintas etapas discretas desde plano hasta celular irregular[(3-6)].

Trabajo enviado: Anales SAM '98 – IBEROMET V: (14-09-1998)

Experimental:

Se desarrollaron crecimientos unidireccionales con el sistema *Al-0.2%Cu* y *Al-0.5%Cu*. La aleación fue preparada partiendo de Al de pureza 99.999% y agregando las cantidades requeridas de eutéctico *Al-33.2%Cu*. Las técnicas de preparación de los prelingotes fueron discutidas en trabajos previos[3-5]. Los crecimientos fueron desarrollados en un equipo del tipo de Bridgman de horno móvil y cámara vertical. Esta disposición proporciona un gradiente térmico en el interior de la cámara, donde son colocados los especímenes a ser crecidos direccionalmente. El sistema de desplazamiento del horno estaba basado en un motor de paso a paso y una caja de reducción, los cuales permitieron obtener una velocidad de traslación en el rango de 0 a 10 $\mu m\ s^{-1}$ con una presición de de $\pm$ 0.1 $\mu m\ s^{-1}$. Las medidas de temperatura en los especímenes fueron tomadas por medio de termocuplas de CrNi-AlNi incluidas en las probetas. El error experimental fue estimado en $\pm$ 0.05 °C. Para el desarrollo de las experiencias fueron seleccionados diferentes gradientes térmicos, que fueron mantenidos fijos durante el transcurso de cada experiencia, en el rango de 1.5 a 3.1 $\pm$ 0.05 $°C\ mm^{-1}$. La velocidad de la interfaz fue calculada en cada momento por medio de ecuaciones de balance de calor a partir de las lecturas de temperatura[5,6].

La microestructura fue observada tanto en cortes longitudinales como en secciones transversales a la dirección de crecimiento. La microestructura fue revelada mediante la solución de agua destilada, 190 *ml* + *H Cl*, 20 *ml* + *H N* O_3, 5 *ml* + *H F*, 2 *ml*, diluida al 33 % en algunos casos. El ataque químico se realizaba en tiempos del orden de los 20 *s* a temperatura ambiente[6].

Resultados y Discusión

En primera instancia se desarrollaron crecimientos unidireccionales con el sistema *Al-0.5%Cu* con el propósito de analizar la transición de la estructura de plano a celular[3,4]. Los resultados obtenidos pueden ser resumidos en que la transición de plano a celular tiene un comportamiento subcrítico, mostrando una histéresis en la evolución de la longitud de onda de las perturbaciones según se aumenta y disminuye la velocidad de avance de la interfaz atravesando el umbral de la transformación[4,5], esquemáticamente $V_{C,Exp}^{-} < V_{C,Exp} \lesssim V_{C,Exp}^{+}$. Por otro lado, se halló experimentalmente una longitud de onda crítica de $\lambda_{C,Exp} \approx 125 \mu m$, mientras que el valor esperado teóricamente es $\lambda_C = 520 \mu m$, esto es, está por debajo del teórico en un factor 4.2, hecho que está de acuerdo con las predicciones de Cheveigne et al. para este sistema[7]. 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 los cortes transversales de la *Figura 1 a) y b).* A pesar de la baja concentración de la aleación utilizada, podemos notar precipitación de eutéctico en las paredes celulares. La formación de estructuras irregulares se da a partir de la desaparición de algunas zonas en las paredes celulares, debido a la variación local de composición en la pared celular. En ausencia de eutéctico, el crecimiento lateral de las celdas se desarrolla en forma inestable una zona de alta composición y con un muy bajo gradiente térmico.

Se realizaron crecimientos con menor composición, con el sistema *Al-0.2%Cu*. En la *Figura 1 c) y d)* se pueden observar los efectos de la manifestación de las inestabilidades morfológicas en la dirección longitudinal respecto a la dirección de crecimiento. La Figura 1 a) es el corte longitudinal de un arreglo de celdas ordenadas. No hay eutéctico presente en la pared celular, lo que favorece la aparición de inestabilidades que poseen una longitud de onda

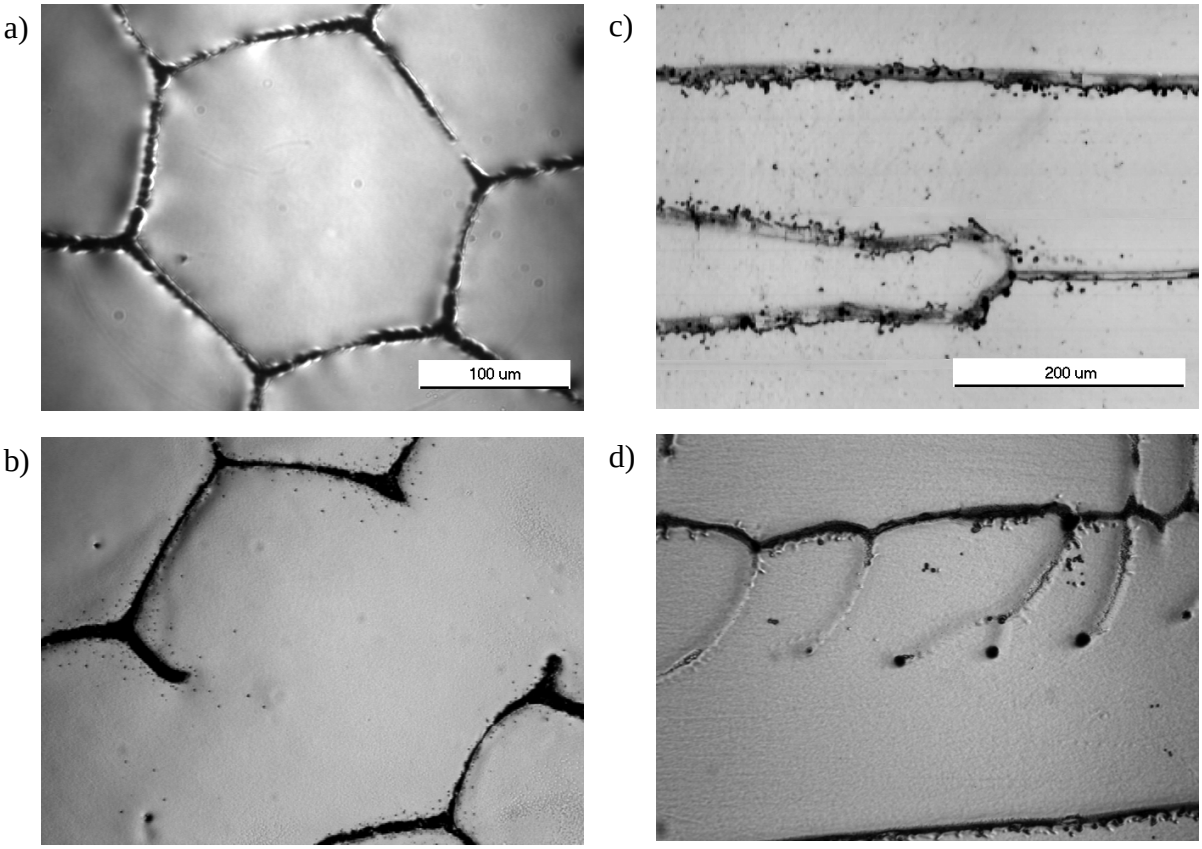

Figura 1: Secuencia para valores decrecientes de (G_L/VC_0)*, a) y b) corte transversal, pasaje de celda hexagonal a irregular, Al-0.5 %Cu; c) y d) corte longitudinal, formación del espaciado secundario, Al-0.2 %Cu*

del mismo orden que las observadas en los cortes transversales a la dirección de crecimiento. El patrón de microsegregación en la zona lateral forma un espaciado característico, permitiendo la nucleación de nodos de composición eutéctica, como puede apreciarse en la Figura 1 d). De modo que la aparición de las estructuras irregulares pueden explicarse por medio del mecanismo de selección del espaciado si el sistema permite la formación de una segunda fase eutéctica estable[6,8].

En la Figura 2 se pueden apreciar las inestabilidades presentes en el crecimiento desde plano hasta celular irregular. Al perturbarse el frente plano de solidificación se establece una morfología celular de crecimiento, apareciendo dos tipos de inestabilidades de diferente frecuencia. La de mayor longitud de onda influye en el espaciado primario[4-6,7]. Las inestabilidades de menor longitud de onda aparecen debido a las condiciones locales de solidificación. Su presencia facilita la aparición de eutéctico precipitado fuera de las posiciones de selección del espaciado, fomentando en primera instancia la formación de celdas irregulares, y a mayor velocidad la aparición del espaciado secundario.

Conclusiones

Se ha estudiado la influencia de las inestabilidades presentes en el crecimiento unidireccional de aleaciones f.c.c. Al-Cu diluidas. Se puede concluir que:

i) El desarrollo de las inestabilidades generan una transición de plano a celular de tipo subcrítica. Las longitudes de onda presentes en este caso difieren en un factor 4.2 respecto al valor teórico calculado, hecho conocido en la literatura para otros sistemas[7].

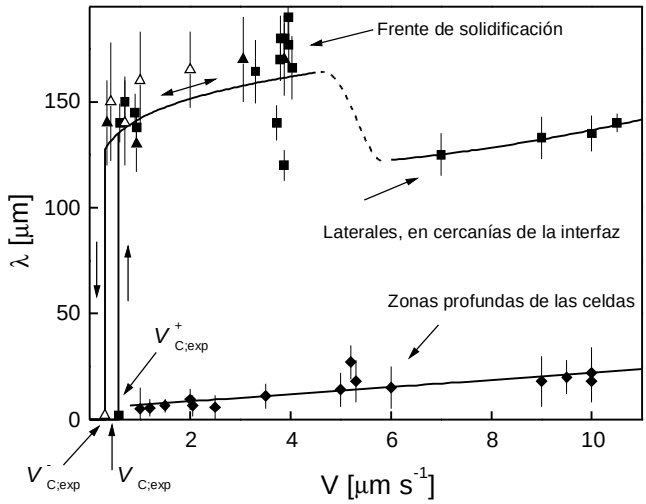

Figura 1: *Longitudes de onda de las perturbaciones presentes en el crecimiento plano-celular-celular irregular. Cuadrados: velocidad ascendente, triángulos sólidos y huecos velocidad descendente, Sistema Al-0.5 %Cu; Rombos: zonas profundas de las celdas, transversal y longitudinal, Sistemas Al-0.2 %Cu y Al-0.5 %Cu.*

ii) El rango de existencia de las celdas regulares es bastante limitado en una simetría de tres dimensiones[9], apareciendo una microestructura de celdas irregulares más compleja.

iii) La transición celular hexagonal a irregular se da en un rango continuo de velocidades. Las inestabilidades laterales pueden generar nodos eutécticos, favoreciendo la estabilidad de las estructuras irregulares.

iv) El mapa de segregación puede ser explicado en términos analíticos en geometrías sencillos o utilizando severas aproximaciones, pero que no comprenden la totalidad de las topologías que aparecen en los crecimientos masivos reales de las aleaciones metálicas.

Agradecimientos: Este trabajo fue desarrollado en el IFIMAT-Universidad Nacional del Centro y fue soportado parcialmente por CICPBA, CONICET y SeCyT-UNICEN.

Referencias

1. S. R. Coriell and G. B. McFadden: Handbook of Crystal Growth, Ch. 12 Vol 1: "Morphological Stability", D. T. Hurle eds. (1993) 785.
2. H. Biloni and W. J. Boettinger, Physical Metallurgy 4th Ed.Ch. 8 "Solidification" R. W. Cahn and P. Haasen eds. (1996) 669.
3. O. Fornaro and H. Palacio, *Scripta Metall. Mater.*, **31** (1994) 1465.
4. O. Fornaro and H. Palacio, *Scripta Matter.*, **36** (1997) 439.
5. O. Fornaro, H. Palacio and H. Biloni, MRS Materials Research Society **vol. 481**, (1998).
6. O. Fornaro, "Inestabilidades Morfológicas en la Solidificación Unidireccional de Aleaciones FCC: Al-Cu Diluidas", Tesis de Doctorado en Física, Fac. Cs. Exactas, Universidad Nacional del Centro (1997).
7. S. Cheveigne, C. Guthmann, P. Kurowsky, E. Vicente and H. Biloni, *J. Crystal Growth*, **62** (1983) 265.
8. J. S. Kirkaldi, Metall. Trans. **24A** (1993) 1689.
9. C. Caroli, B. Caroli and B. Roulet, *J. Crystal Growth* **68** (1984) 677.