

# V 17 N 2

## Espaçamentos dendríticos primários da liga Sn-5%Pb solidificada direcionalmente em um sistema horizontal

Primary dendritic spacings during the horizontal directional solidification of Sn-5%Pb alloy

Nogueira, M.R.<sup>1</sup>; Carvalho, D.B.<sup>1</sup>; Moreira, A.L.<sup>2</sup>; Dias Filho; J.M.<sup>2</sup>, Rocha, O.L.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> UFPA Universidade Federal do Pará, PPGEM Programa de Pós-Graduação em Eng. Mecânica Av. Augusto Corrêa 1, cep 66075-110, Belém, Pará, Brasil.

e-mail: marcio.physics@hotmail.com ; diegodlbc@hotmail.com ; lmoreira@amazonet.com.br <sup>2</sup> IFPA Instituto Federal de Educação, Ciência e Tecnologia do Pará, Av. Almirante Barroso 1155 cep 66093-020, Belém, Pará, Brasil.

e-mail: marcelino dias@hotmail.com; otvrocha@oi.com.br

#### RESUMO

Este trabalho desenvolve um estudo teórico-experimental sobre a correlação entre parâmetros térmicos e os espaçamentos dendríticos primários da liga Sn-5%Pb solidificada direcionalmente em um sistema horizontal sob condições transientes de extração de calor. Os perfis de temperatura foram medidos em diferentes posições do lingote e os dados obtidos foram armazenados automaticamente. São apresentados resultados para o coeficiente de transferência de calor na interface metal/molde o qual foi calculado a partir de uma análise comparativa entre os perfis térmicos experimentais e valores teóricos fornecidos por um modelo numérico. Um método teórico-experimental é aplicado para determinar as velocidades de deslocamento da isoterma liquidus e as taxas de resfriamento. Os resultados teóricos e experimentais levantados apresentaram boa concordância. Um estudo comparativo é realizado entre os dados encontrados neste trabalho e aqueles apresentados na literatura para os espaçamentos dendríticos primários da liga investigada quando solidificada direcionalmente nos sistemas verticais ascendente e descendente, sob as mesmas condições assumidas neste trabalho. A análise das microestruturas indica que os espaçamentos dendríticos primários são bastante influenciados pelos parâmetros térmicos de solidificação.

Palavras-chave: solidificação horizontal, espaçamento dendrítico primário, ligas Sn-Pb.

#### ABSTRACT

In order to investigate the effect of thermal parameters on the primary dendritic spacings of Sn-5%Pb alloy, horizontal directional solidification experiments have been carried out under unsteady state heat flow conditions. Thermocouples have been connected with the metal, and the time-temperature data have been recorded automatically. The results include metal/mold heat transfer coefficient determined from comparisons between the experimental thermal profiles and simulations provided by a numerical model. A combined theoretical and experimental approach is developed to determine the solidification thermal parameters: tip growth rates, and cooling rates. The experimental and calculated values have shown a good agreement. A comparative study between experimental data of this work and those from the literature proposed to predict the primary spacings during upward and downward vertical unsteady-state directional solidification of Sn-Pb alloys is presented. The observation of the microstructures has indicated that the primary dendritic spacings have been affected by the direction of growth, increasing in conditions of horizontal solidification when compared with those obtained during vertical solidification.

Keywords: horizontal solidification, primary dendritic spacing, Sn-Pb alloys.

## 1. INTRODUÇÃO

A microestrutura obtida na grande maioria dos processos de solidificação é a dendrítica e uma interessante forma de estudar o crescimento de dendritas em peças fundidas é através da análise de estruturas brutas obtidas a partir de sistemas de solidificação unidirecional [1]. Neste contexto, os efeitos do vetor gravidade em relação à formação dos espaçamentos dendríticos têm sido investigados por meio de estudos de solidificação direcional desenvolvidos em sistemas verticais ascendentes, verticais descendentes e horizontais. Nos sistemas verticais ascendentes, nos quais a extração de calor é realizada através da base do molde, a mudança de fase líquido/sólido acontece em sentido contrário ao da ação da gravidade com o peso próprio do lingote, portanto, atuando no sentido de favorecer o contato térmico com a base do molde. Durante o processo, a influência da convecção é minimizada uma vez que o soluto é rejeitado para regiões interdendríticas promovendo a formação de um líquido interdendrítico mais denso que o volume total de metal líquido. No caso dos sistemas verticais descendentes, onde a extração de calor é realizada através da parte superior do molde, a solidificação acontece no mesmo sentido ao da ação da gravidade com o peso próprio do lingote atuando de forma a deslocá-lo do contato com o molde o que caracteriza uma situação de maior resistência térmica à passagem de calor do lingote em direção ao meio ambiente. Outra diferença essencial consiste sempre na presença de algum movimento convectivo uma vez que o perfil de temperatura do líquido é crescente em direção à base do lingote o que significa que ocorrerá, pelo menos, convecção por diferenca de temperatura no líquido. Neste caso, poderão também ocorrer efeitos convectivos no metal líquido devido à diferença relativa entre as densidades do soluto e do solvente. Na solidificação unidirecional horizontal, no entanto, quando o fluxo de calor é extraído através de somente uma das paredes laterais do molde, a convecção em função dos gradientes de composição no líquido sempre ocorrerá. Uma interessante característica adicional do sistema horizontal durante a mudança de fase é o gradiente de concentração de soluto bem como os efeitos de densidade na direção vertical, pois o líquido enriquecido de soluto sempre decanta ao passo que o solvente tende a emergir devido às forças de flutuabilidade. Além disso, devido os efeitos impostos pela convecção termossolutal, sempre ocorrerá um gradiente de temperatura na direção vertical. Este arranjo experimental é importante exatamente por este motivo, ou seja, promove o contraponto com a solidificação nos sistemas verticais permitindo a verificação da influência de correntes convectivas sobre a microestrutura de solidificação obtida, mostrando as diferenças entre as três configurações quando são solidificadas ligas de mesma composição.

Na literatura, observa-se que a grande maioria dos estudos desenvolvidos dedica-se a investigar a formação de estruturas dendríticas obtidas durante a solidificação unidirecional de materiais metálicos somente nos sistemas verticais considerando o regime estacionário de extração de calor [2-6]. Assim, poucos são os trabalhos que tratam da solidificação unidirecional em sistemas com configuração horizontal em regime transiente [7-9] uma vez que esta é mais complexa sob o ponto de vista da determinação das variáveis térmicas de solidificação.

O principal objetivo deste trabalho é desenvolver um estudo teórico-experimental sobre a correlação entre os parâmetros térmicos e os espaçamentos dendríticos primários ( $\lambda_1$ ) da liga Sn-5%Pb quando solidificada direcionalmente em um sistema de configuração horizontal refrigerado a água, sob condições transientes de extração de calor. Um método teórico-experimental é utilizado na determinação das variáveis térmicas de solidificação de interesse tais como coeficiente de transferência de calor transiente na interface metal/molde ( $h_i$ ), velocidades de deslocamento da isotermas liquidus ( $V_L$ ) e taxas de resfriamento ( $T_R$ ) as quais influenciam diretamente os referidos espaçamentos dendríticos. Um estudo comparativo entre os resultados obtidos neste trabalho e valores apresentados na literatura para os espaçamentos dendríticos primários da liga estudada, quando solidificada direcionalmente nos sistemas verticais ascendente e descendente sob as mesmas condições assumidas neste trabalho, também é realizado.

## 2. MATERIAIS E MÉTODOS

A metodologia experimental conduzida neste trabalho consistiu basicamente no projeto, construção e aferição de um dispositivo de solidificação direcional horizontal refrigerado à água, o qual se encontra detalhado em artigos anteriores [10,11], caracterização térmica da liga Sn-5%Pb para ajuste do teor de soluto através da obtenção da respectiva curva de resfriamento, análise química da liga para confirmação do teor de soluto por meio do processo de absorção atômica, obtenção dos perfis de temperatura para cinco posições de termopares (6, 10, 16, 34 e 54 mm) em relação à interface metal/molde e determinação das variáveis térmicas de solidificação ( $V_L$  e  $T_R$ ). Os procedimentos adotados para o cálculo dessas variáveis encontram-se especificados igualmente em trabalhos recentes [10,11]. As correspondentes propriedades termofísicas da

liga investigada são mostradas na Tabela 1 [12,13]. A Figura 1 apresenta o esquema completo do dispositivo de solidificação utilizado neste estudo mostrando sua interface com o sistema de aquisição de dados.

PROPRIEDADES	DENSIDADE	CALOR LATENTE DE FUSÃO	CALOR ESPECÍFICO	CONDUTIVIDADE TÉRMICA	TEMPERATURA SOLIDUS	TEMPERATURA LIQUIDUS
Símbolo/Unidade	$\begin{array}{c} \rho_{\rm S} \; [kg/m^3] \\ (solido) \\ \rho_{\rm L} \; [kg/m^3] \\ (líquido) \end{array}$	L [J/kg]	c <sub>s</sub> [J/kg.K] (sólido) c <sub>L</sub> [J/kg.K] (líquido)	K <sub>s</sub> [W/m.K] (sólido) K <sub>L</sub> [W/m.K] (líquido)	T <sub>s</sub> [°C]	T <sub>L</sub> [°C]
Liga Sn-5%Pb	7475 7181	59214	217 253	65,6 32,8	183	226

Tabela 1: Propriedades termofísicas da liga Sn-5%Pb [12,13].



Figura 1: Dispositivo de solidificação interfaceado com o sistema de aquisição de dados.

O dispositivo em questão, esquematizado na Figura 2, foi projetado de tal modo que a extração de calor fosse realizada somente por uma das paredes laterais (refrigerada a água) da coquilha promovendo a solidificação direcional horizontal.



Figura 2: Representação esquemática do dispositivo de solidificação direcional horizontal.

As resistências elétricas do forno tiveram sua temperatura controlada a fim de permitir a obtenção dos níveis de superaquecimentos desejados no metal líquido. A coquilha de aço carbono 1020 utilizada nos trabalhos experimentais apresenta 110 mm de comprimento, 80 mm de largura, 60 mm de altura e 3 mm de espessura. Suas superfícies laterais internas foram revestidas com camadas de alumina e a parte superior da mesma foi isolada com material cerâmico refratário a fim de evitar perdas de calor permitindo, dessa maneira, a direcionalidade desejada para o fluxo de calor. Além disso, a coquilha foi soldada sem uma das paredes laterais a fim de que, quando posicionada no dispositivo, impedisse a resistência térmica com a câmara de refrigeração na qual ocorre o fluxo de água.

As temperaturas no metal fundido foram monitoradas durante a solidificação através de um conjunto de cinco termopares do tipo K (Chromel-Alumel) constituídos das seguintes características: diâmetro igual a 1,5 mm; faixa de utilização até 1260 °C (0,000 a 50,990) mV; potência termoelétrica: 4,04 mV (100 °C). O AMR-Software, marca ALMEMO Data-Control, foi o software utilizado para acompanhar, registrar e armazenar os dados obtidos pelos termopares durante o processo de solidificação, além de possibilitar um monitoramento on-line dos dados medidos.

O processo de solidificação consistiu no vazamento da liga Sn-5%Pb no interior da coquilha, localizada a parte superior do dispositivo, devidamente aquecida por resistências elétricas. Atingido o nível de superaquecimento desejado, isto é, 10% acima da temperatura liquidus o qual normalmente representa o grau de superaquecimento adotado na indústria de fundição, as resistências elétricas do dispositivo foram desligadas e o sistema de refrigeração acionado. Os jatos do fluido refrigerante induziram uma extração de calor longitudinal, conforme estabelecido neste estudo. A fim de avaliar-se a eficiência do fluxo de calor na direção horizontal no dispositivo de solidificação, a macroestrutura do lingote resultante foi revelada. Finalmente, para caracterizar e quantificar a estrutura dendrítica foram retirados transversalmente ao longo do comprimento longitudinal do lingote nove corpos de prova, nas posições correspondentes a 5, 10, 15, 20, 30, 40, 50, 60 e 70 mm em relação à interface metal/molde. Os corpos de prova foram embutidos a frio, lixados e polidos com pasta de diamante de 6 µm até 1 µm. Em seguida, foi realizado o ataque químico com solução de 5% de ácido fluorídrico em água destilada para revelar a microestrutura. As medidas de  $\lambda_1$  foram realizadas utilizando-se o software Image Tool (IT). O método utilizado para quantificar os valores desses espaçamentos foi o método do triângulo, utilizando-se o critério de vizinhança, que considera o valor do espaçamento primário igual à distância média entre os centros geométricos das células [4,9]. Foram realizadas, no mínimo, vinte medidas para cada posição selecionada sendo que, ao final, obteve-se a média dos valores e o intervalo de dispersão. O espaçamento expressa a razão entre essa dimensão total e o número de distâncias centro a centro percorridas.

## 3. RESULTADOS E DISCUSSÕES

## 3.1. Variáveis Térmicas de Solidificação (h<sub>i</sub>, V<sub>L</sub> e T<sub>R</sub>)

A Figura 3, apresentada em recente trabalho desenvolvido por autores deste artigo no qual investigam o coeficiente de transferência de calor na interface metal/molde durante a solidificação horizontal transiente de ligas hipoeutéticas Sn-Pb [11], mostra os perfis térmicos experimentais obtidos em diferentes posições a partir da interface metal/molde durante a solidificação direcional horizontal da liga Sn-5%Pb. Para a determinação dos valores de h<sub>i</sub> foi utilizado o perfil térmico referente ao termopar mais próximo da superfície refrigerada (6 mm) pois eventuais perdas de calor através das paredes laterais do molde são mais improváveis para esta posição, o que assegura melhores condições de unidirecionalidade para o fluxo de calor. O procedimento aplicado para o cálculo de h<sub>i</sub>, conhecido como método do confronto de perfis térmicos teóricos e experimentais, utilizou o arquivo contendo o monitoramento experimental da variação de temperatura e um software para cálculos numéricos que simula as condições da solidificação unidirecional com o fluxo de calor extraído na direção horizontal [14]. O referido método consiste em mapear experimentalmente as temperaturas em determinados pontos do sistema metal/molde ao longo da solidificação e, posteriormente, confrontar as curvas de resfriamento experimentais com curvas simuladas obtidas através de um modelo numérico de solidificação baseado em um método de diferenças finitas [14] e, através de um processo iterativo, determinar o perfil transitório de hi que forneceu o melhor ajuste entre as curvas. Trata-se, portanto, de uma forma indireta de determinação de h<sub>i</sub>. Esse método de determinação de h<sub>i</sub>, em função da atual disponibilidade de instrumentos que permitem um melhor controle e precisão da leitura dos registros térmicos das ligas investigadas e do desenvolvimento de softwares específicos, é extremamente conveniente, principalmente quando se dispõe de um sistema de aquisição de dados para monitoramento experimental das temperaturas. O perfil do coeficiente de transferência de calor obtido é representado por uma equação na forma de potência em função do tempo cuja expressão geral é dada por  $h_i = C(t)^{-n}$  onde  $h_i$ 

(W/mK), t (s) e "C" e "n" são constantes que dependem, respectivamente, da temperatura de vazamento, material do molde e composição da liga.



Figura 3: Curvas experimentais de resfriamento. T<sub>V</sub> é a temperatura de vazamento.

A Figura 4, igualmente apresentada no recente estudo anteriormente referido realizado por autores deste artigo [11], mostra o resultado do método do confronto dos perfis térmicos teóricos e experimentais, utilizado para calcular o coeficiente de transferência de calor na interface metal/molde, indicando a equação na forma de potência fornecida pelo melhor ajuste entre as curvas teórica, obtida pelo método numérico, e a experimental da liga estudada.



**Figura 4:** Curvas teórica e experimental de resfriamento correspondentes ao termopar localizado a 6 mm da superfície de extração de calor e respectiva equação obtida para valores de h<sub>i</sub>.

A Figura 5 apresenta o perfil de h<sub>i</sub> durante a solidificação horizontal da liga Sn-5%Pb. Verifica-se que os valores do coeficiente de transferência de calor são mais elevados nos instantes iniciais da solidificação, devido a boa conformidade superficial entre o metal que solidifica e o molde. Em seguida, h<sub>i</sub> sofre uma acentuada redução em seus valores em função tanto da formação do "gap" de ar na interface metal/molde como dos efeitos produzidos pela contração volumétrica do sólido, principalmente nos primeiros cinqüenta segundos. Posteriormente, ocorre uma diminuição gradual de h<sub>i</sub> até, finalmente, permanecerem seus valores praticamente constantes ao longo do processo de solidificação. Comportamento semelhante quanto ao valor

de h<sub>i</sub> foi observado por Rocha *et al.* [9], que trabalharam com a liga Sn-5%Pb em condições de solidificação direcional vertical ascendente obtendo para a mesma um perfil transitório de h<sub>i</sub> próximo ao valor determinado neste trabalho, ou seja, h<sub>i</sub> = 6000(t) <sup>-0,20</sup>. Por outro lado, Spinelli *et al.* [15], trabalhando com a mesma composição assumida neste estudo contudo em condições de solidificação direcional vertical descendente, obtiveram um perfil para h<sub>i</sub> bem menor que aquele calculado neste trabalho. A diferença observada deve-se ao fato de que a solidificação aconteceu no mesmo sentido ao da ação da gravidade com o peso próprio do lingote atuando no sentido de deslocá-lo do contato com a base refrigerada o que configurou uma situação de maior resistência térmica à passagem de calor do lingote em direção ao fluido de refrigeração. A lei experimental obtida por Spinelli *et al.* foi h<sub>i</sub> = 1650 (t)<sup>-0,001</sup>. É importante salientar, que alguns cuidados devem ser tomados ao tentar explicar-se a tendência geral do comportamento do h<sub>i</sub> de uma liga qualquer, pois importantes fatores tais como teor de soluto, fluidez da liga, intervalo de solidificação, direção do crescimento e propriedades termofísicas do metal e do molde são alguns daqueles elementos que influenciam essa tendência. Assim, os resultados experimentais obtidos para h<sub>i</sub> neste trabalho representam um valor que é válido somente para as condições particulares em que foi medido podendo ser utilizados, portanto, apenas como referência em outros tipos de aplicações práticas.



Figura 5: Perfil do coeficiente de transferência de calor na interface metal/molde em função do tempo.

Os valores dos espaçamentos dendríticos primários são dependentes dos parâmetros térmicos velocidade de deslocamento da isotermas liquidus e taxa de resfriamento, os quais variam com o tempo e a posição em relação à interface metal/molde durante a solidificação. Para a determinação destes parâmetros os resultados dos perfis térmicos experimentais foram utilizados para calcular a posição da isoterma liquidus em função do tempo. Assim, a função P = f(t) onde "P"e "t" representam, respectivamente, a posição da isoterma liquidus em função o tempo, foi definida experimentalmente pela interseção da reta da temperatura liquidus ( $T_L$ ) da liga com o perfil térmico correspondente à posição de cada termopar, ou seja, a partir da  $T_L$  da liga é traçada uma reta paralela ao eixo do tempo, indicado no gráfico que representa os perfis térmicos. Por meio da interseção da reta proveniente da  $T_L$  com o perfil térmico de cada termopar, determina-se o tempo correspondente à posição dos pares ordenados (P,t) obtidos a partir do procedimento em questão possibilita que seja plotado um gráfico experimental da posição da isoterma liquidus com o tempo, conforme mostrado na Figura 6.



Figura 6: Posição da isoterma liquidus a partir da interface metal/molde em função do tempo.

A derivada da função potência da posição com relação ao tempo, ou seja,  $V_L = dP/dt$ , permitiu a obtenção dos respectivos valores experimentais para as velocidades de deslocamento da isoterma liquidus  $(V_L)$  a partir da interface metal/molde em função do tempo, ou seja,  $V_L = 1,68(t)^{-0,43}$  o que corresponde à passagem da frente líquida por cada termopar, conforme mostrado na Figura 7. Os valores das taxas de resfriamento  $(T_R)$  foram determinados considerando os perfis experimentais de temperatura, conforme metodologia apresentada anteriormente por um dos autores deste trabalho [9], ou seja, a taxa de resfriamento para cada posição dos termopares foi obtida experimentalmente a partir das interseções da reta da temperatura liquidus com os perfis térmicos equivalentes a cada posição dos termopares, através do resultado da leitura direta do quociente das temperaturas imediatamente antes e depois da temperatura liquidus e dos tempos correspondentes, isto é,  $T_R = \Delta T/\Delta t$ . Assim, com base nos pontos experimentais foram geradas funções potência da taxa de resfriamento em função da posição cujos resultados encontram-se indicados na Figura 8. As Figuras 7 e 8 também comparam os valores experimentais de V<sub>L</sub> e T<sub>R</sub> com as previsões teóricas fornecidas por um modelo numérico [15] que tem sido bastante utilizado por outros autores no estudo da solidificação direcional em sistemas com configuração horizontal [10,16,17] e vertical descendente [15,17] que produzem convecção termossolutal. O mesmo foi selecionado da literatura por ser o mais adequado para representar as condições de solidificação assumidas neste trabalho. Assim, o perfil obtido anteriormente para h<sub>i</sub> foi utilizado neste modelo a fim de permitir a determinação dos valores teóricos de V<sub>L</sub> e T<sub>R</sub>. No referido modelo numérico, os valores desses parâmetros térmicos são calculados a cada incremento de tempo correspondente a 0,001 s. Observa-se, que houve uma boa concordância entre os resultados encontrados.



**Figura 7:** Velocidades de deslocamento da isoterma liquidus em função da posição a partir da interface metal/molde.



Figura 8: Taxas de resfriamento em função da posição a partir da interface metal/molde.

#### 3.2. Espaçamentos Dendríticos Primários (λ<sub>1</sub>) e Correlação com Variáveis

## Térmicas de Solidificação (V<sub>L</sub> e T<sub>R</sub>)

A direcionalidade da estrutura solidificada da liga Sn-5%Pb é mostrada na Figura 9. A macroestrutura é constituída praticamente de grãos colunares dendríticos de grandes dimensões cuja direção preferencial de crescimento foi praticamente paralela àquela do fluxo de calor. Após a região colunar, pode ser observada a presença de grãos equiaxiais bastante grosseiros, constituídos de dimensões e orientações variadas, localizados principalmente na região à direita próxima à base do lingote. Em função da transiência ocorrida nos instantes iniciais do processo, imposta pelas condições de solidificação assumidas, a presença de grãos coquilhados na macroestrutura não pode ser claramente definida. A macroestrutura revelada não é caracterizada visualmente pela existência de uma transição colunar-equiaxial (TCE).



Figura 9: Macroestrutura da liga Sn-5%Pb (escala em cm).

As microestruturas observadas ao longo das seções transversais da liga hipoeutética Sn-5%Pb solidificada direcionalmente em um sistema refrigerado de configuração horizontal, apresentaram morfologia tipicamente dendrítica. As microestruturas obtidas nas posições correspondentes a 30, 50 e 70 mm a partir da interface metal/molde são apresentadas na Figura 10.



(c)

**Figura 10:** Microestruturas dendríticas obtidas: (a) P = 30 mm;  $V_L = 0,24 \text{ mm/s}$ ;  $T_R = 0,17 \text{ K/s}$ ;  $\lambda_1 = 106 \mu\text{m}$ (b) P = 50 mm;  $V_L = 0,16 \text{ mm/s}$ ;  $T_R = 0,08 \text{ K/s}$ ;  $\lambda_1 = 138 \mu\text{m}$  (c) P = 70 mm;  $V_L = 0,12 \text{ mm/s}$ ;  $T_R = 0,04 \text{ K/s}$ ;  $\lambda_1 = 164 \mu\text{m}$ .

Com base nos equipamentos e procedimentos descritos anteriormente, foram realizadas as medições dos espaçamentos dendríticos primários em posições específicas no lingote, cujos resultados obtidos são apresentados na Figura 11. Conforme indicado na mesma, os espaçamentos interdendríticos primários aumentam progressivamente da interface metal/molde para o interior do lingote. As Figuras 7 e 8 permitem observar que a ação do fluido de refrigeração impõe valores de velocidades e taxas de resfriamento bastante elevados próximo à referida interface e que estes diminuem gradativamente durante a solidificação em função do aumento da resistência térmica promovida pela progressiva formação do metal sólido. Este efeito influencia diretamente os espaçamentos dendríticos primários determinados experimentalmente para a liga Sn-5%Pb.

A Figura 12 apresenta os valores experimentais dos espaçamentos dendríticos primários da liga investigada em função da velocidade de deslocamento da isoterma liquidus. Pode ser observado, que os espaçamentos em questão diminuem à medida que V<sub>L</sub> aumenta. Neste caso, o expoente -1,1 foi determinado para a liga analisada caracterizando assim uma lei experimental para os espaçamentos dendríticos primários com V<sub>L</sub> da forma  $\lambda_1 = \text{constante} (V_L)^{-1,1}$ . Convém ressaltar, que Rocha *et al.* [9,18] determinaram pela primeira vez esta lei experimental quando estudaram espaçamentos celulares e dendríticos primários em ligas hipoeutéticas dos sistemas Sn-Pb (1,5; 2,5; 5; 15 e 30%Pb) solidificadas em um sistema direcional vertical ascendente. Posteriormente, a mesma foi ratificada por outros autores [15] também durante a solidificação de ligas Sn-Pb (5; 15 e 20%Pb) em um sistema vertical descendente o que valida, portanto, os resultados encontrados e permite afirmar que em princípio a referida lei experimental pode ser aplicada para ligas do sistema Sn-Pb solidificadas sob condições transientes de fluxo de calor em qualquer sistema direcional, independente de sua configuração.

A Figura 13 mostra os resultados experimentais dos espaçamentos dendríticos primários da liga Sn-5%Pb em função da taxa de resfriamento. Da mesma maneira que no caso anterior, os referidos espaçamentos também diminuem para valores mais elevados de  $T_R$ . A Figura em questão também permite observar que o expoente -0,55, obtido para o caso investigado, caracteriza a lei de crescimento dos espaçamentos dendríticos primários com T<sub>R</sub>. Esse comportamento mostra uma concordância muito boa com os resultados obtidos por Bouchard e Kirkaldy [8] bem como por Rocha *et al.* [9] para ligas de diversos sistemas binários solidificadas em moldes verticais ascendentes sob condições transientes de extração de calor, os quais são representados por equações na forma de potência em função do tempo definidas, respectivamente, por  $\lambda_1 = \text{constante} (T_R)^{-0.50} e \lambda_1 = \text{constante} (T_R)^{-0.55}$ .



Figura 11: Espaçamentos dendríticos primários em função da posição para a liga estudada.



Figura 12: Espaçamentos dendríticos primários em função da velocidade de deslocamento da isoterma liquidus.



Figura 13: Espaçamentos dendríticos primários em função da taxa de resfriamento da liga Sn-5%Pb.

Conforme observado nas Figuras 6, 11, 12 e 13, as leis experimentais que melhor representaram a distribuição dos resultados obtidos neste trabalho foram determinadas com base no coeficiente de correlação  $(R^2)$  que fornece o grau de ajuste matemático encontrado entre as referidas leis e os correspondentes resultados experimentais. De maneira geral, valores de  $R^2 \ge 0.7$  são considerados aceitáveis na literatura.

#### 3.3. Resultados Experimentais dos Espaçamentos Dendríticos Primários (λ<sub>1</sub>) e Modelos Teóricos

A Figura 14 compara os resultados experimentais dos espaçamentos dendríticos primários deste trabalho com modelos teóricos desenvolvidos para condições de solidificação em regime transiente de extração de calor. Os respectivos modelos são os de Hunt e Lu [7] e Bouchard e Kirkaldy [8] com fator de correção  $a_1 = 50$  para ligas Sn-Pb, sugerido pelos autores. Pode-se notar, que os valores teóricos obtidos com o limite inferior do modelo de Hunt e Lu [7], apesar de se aproximarem bem mais dos resultados experimentais de  $\lambda_1$ , superestimam ligeiramente os mesmos. No que se refere ao modelo de Bouchard e Kirkaldy [8], observa-se praticamente o mesmo comportamento verificado para o caso do limite inferior de Hunt e Lu [7].



**Figura 14:** Comparação dos resultados experimentais de  $\lambda_1$  com valores de modelos teóricos desenvolvidos para condições de solidificação em regime transiente de extração de calor.

Os valores teóricos fornecidos pelos modelos de Hunt e Lu [7] e Bouchard e Kirkaldy [8] podem apresentar, eventualmente, discrepâncias quando comparados com resultados experimentais pois os mesmos não consideram os efeitos tanto da difusão de soluto como da diminuição da segregação dendrítica durante a solidificação. Outras incertezas introduzidas nesses modelos, tais como propriedades termofísicas, também podem influenciar os resultados teóricos calculados. Além disso, as hipóteses físicas assumidas de que os coeficientes de partição e a inclinação da linha liquidus são constantes durante a solidificação os tornam bastante imprecisos para alguns sistemas binários. Assim, todas essas incertezas devem ser levadas em conta quando se comparam resultados experimentais de espaçamentos dendríticos primários com aqueles fornecidos pelos referidos modelos [9].

A Figura 15 compara os resultados obtidos experimentalmente para os espaçamentos dendríticos primários com os modelos teóricos de Hunt [2] e Kurz e Fisher [3], ambos desenvolvidos para condições de solidificação em regime estacionário de extração de calor. Verifica-se que os valores teóricos obtidos com o modelo de Hunt [2] apresentam uma concordância apenas razoável quando comparados com os resultados experimentais. Por outro lado, analisando-se os valores teóricos encontrados com a aplicação do modelo de Kurz e Fisher [3] conclui-se que os mesmos superestimam a realidade experimental deste trabalho. Conforme já era esperado, estes modelos não apresentaram boa concordância com os resultados experimentais obtidos. É importante salientar, no entanto, que os mesmos foram utilizados na análise dos resultados deste artigo pelo fato de alguns trabalhos semelhantes, relacionados ao assunto, aplicarem os modelos em questão na aferição de seus resultados experimentais.



**Figura 15:** Comparação dos resultados experimentais de  $\lambda_1$  com valores de modelos teóricos desenvolvidos para condições de solidificação em regime estacionário de extração de calor.

#### 3.4. Influência da Convecção Termossolutal nos Espaçamentos Dendríticos Primários

Com o objetivo de analisar a influência da convecção termossolutal sobre os espaçamentos dendríticos primários, a Figura 16 compara os resultados experimentais desses espaçamentos em função da taxa de resfriamento para a liga Sn-5%Pb solidificada direcionalmente em sistemas refrigerados com diferentes configurações geométricas, segundo as mesmas condições assumidas neste trabalho. Os resultados experimentais apresentados para os sistemas verticais ascendente e descendente foram obtidos, respectivamente, por Rocha *et al* [9] e Spinelli *et al* [15].



Figura 16: Influência do sentido de crescimento do sólido nos espaçamentos dendríticos primários.

Conforme já era esperado, em todos os casos considerados os valores de  $\lambda_1$  diminuem à medida que a taxa de resfriamento assume níveis mais elevados. Tal fato pode ser explicado em função do fluido de refrigeração impor valores de T<sub>R</sub> bastante elevados próximo à interface metal/molde os quais diminuem gradativamente durante a solidificação em função do aumento da resistência térmica promovida pela progressiva formação do metal sólido. Por outro lado, levando-se em conta um mesmo valor para a taxa de resfriamento, verifica-se que os espaçamentos dendríticos primários são maiores quando a referida liga é solidificada no sistema horizontal e menores no sistema vertical descendente. Para justificar tal fato, é importante salientar que no caso da liga estudada a densidade do estanho (solvente) equivale a 7,3 g/cm<sup>3</sup> enquanto que a do chumbo (soluto) corresponde a 11,4 g/cm<sup>3</sup>. Assim, quando o processo de solidificação ocorre no sistema vertical ascendente a transferência de calor acontece essencialmente por condução térmica unidirecional pois não existem correntes convectivas nem por diferença de temperatura e nem por diferença de concentração quando o soluto é rejeitado. Logo, o soluto segregado promove a formação de um líquido mais denso que o volume global de metal líquido sendo o mesmo absorvido por regiões interdendríticas da frente de solidificação cujo deslocamento se dá em sentido contrário ao da ação do vetor gravidade, desenvolvendo um perfil estável de concentração de soluto tanto na região pastosa como no líquido à frente da região dendrítica. Por outro lado, a solidificação direcional vertical descendente sempre ocorre na presença de algum movimento convectivo o que significa que existe pelo menos convecção por diferença de temperatura no líquido. Como o soluto rejeitado provoca um líquido interdendrítico de maior densidade do que o volume global de metal líquido, também acontece movimento convectivo por diferença de densidade e, assim, correntes convectivas no líquido adjacente à frente de solidificação são formadas. Segundo Spinelli [15], a primeira situação (caso ascendende) ajuda o transporte radial de material e favorece espaçamentos maiores, enquanto que a segunda situação (caso descendente) potencializa o efeito da rejeição de soluto e a necessidade da segregação lateral, o que favorece a redução dos espaçamentos dendríticos. Nesse sentido, é possível prever que na solidificação vertical ascendente o desarranjo da estrutura dendrítica, provocado pela segregação lateral do soluto, possa estar instabilizando as paredes laterais dos braços dendríticos secundários estimulando o crescimento de braços dendríticos terciários que passam a se desenvolver rapidamente como ramificações primárias potencializadas pelo efeito da gravidade que atua na mesma direção do avanço da solidificação, refinando assim a estrutura. Neste caso, dependendo do corte transversal que é aplicado no lingote para caracterização da estrutura dendrítica primária, é possível medir  $\lambda_1$  entre ramificações primárias e terciárias.

No que se refere à solidificação direcional horizontal convém ressaltar que a convecção ocorre devido gradientes de concentração no líquido tanto na direção longitudinal (avanço da solidificação) como na direção vertical (ação da gravidade) promovendo um líquido interdendrítico mais denso que o volume global, potencializando a segregação lateral e ao memo tempo estimulando o surgimento de braços dendríticos terciários a partir dos secundários. Neste caso, no entanto, os efeitos proporcionados pela ação conjunta da gravidade e convecção nos canais interdendríticos impedem que esses braços terciários cresçam o suficiente,

por quebras dos mesmos, para tornarem-se ramificações primárias tornando desta maneira a estrutura grosseira.

Outra forma de representar os espaçamentos dendríticos é em função do tempo local de solidificação solidificação ( $t_{SL}$ ) que corresponde à diferença entre os tempos de passagem das isotermas solidus e liquidus por uma determinada posição (tempo transcorrido do início ao final da solidificação desse ponto). No caso da solidificação unidirecional  $t_{SL}$  pode ser relacionado na forma  $t_{SL} = \Delta T(T_R)^{-1}$ , onde  $\Delta T$  é o intervalo de solidificação medido pela diferença entre as temperaturas das isotermas liquidus e solidus, e a equação de  $\lambda_1$  na forma de potência representada por outra função em que  $\lambda_1$  = constante ( $t_{SL}$ )<sup>0,55</sup>.

É possível também explicar o fenômeno através da dissipação do superaquecimento frente à isoterma líquidus, que na presença de convecção é mais ascentuada. O superaquecimento atua no sentido de diminuir a velocidade de deslocamento da isoterma líquidus, enquanto que o deslocamento da isoterma solidus praticamente não sofre influência desse parâmetro, o que faz com que as essas isotermas se aproximem mais à medida que se aumenta o superaquecimento, provocando uma diminuição nos tempos locais de solidificação ( $t_{SL}$ ). Por outro lado, na presença da convecção, o superaquecimento à frente da isoterma líquidus é dissipado mais rapidamente aumentando a velocidade de deslocamento da isoterma líquidus e, consequentemente, o tempo local de solidificação proporcionando condição que permita que as pontas das dendritas sejam aceleradas em relação à raiz, favorecendo uma estrutura mais grosseira.

## 4. CONCLUSÃO

O estudo teórico-experimental desenvolvido neste trabalho sobre os espaçamentos dendríticos primários da liga hipoeutética Sn-5%Pb solidificada direcionalmente em um sistema refrigerado de configuração horizontal, sob condições transientes de extração de calor, permite que sejam obtidas as seguintes conclusões:

- O presente estudo foi capaz de determinar satisfatoriamente o perfil do coeficiente de transferência de calor interfacial da liga investigada o qual pode ser representado por uma equação na forma de potência em função do tempo expressa por h<sub>i</sub> = 6000(t) <sup>-0,33</sup>.
- A comparação dos valores experimentais dos parâmetros térmicos  $V_L$  e  $T_R$  com as previsões teóricas fornecidas por um método numérico utilizado no estudo da solidificação direcional levando em conta os efeitos da convecção termossolutal, apresentou uma boa concordância entre os resultados encontrados.

Conforme esperado, os valores de V<sub>L</sub> e T<sub>R</sub> diminuem com o avanço da isoterma liquidus, isto é, quanto mais próximo da base refrigerada maiores são esses parâmetros. Os mesmos podem ser também representados por equações na forma de potência em função da posição dadas, respectivamente, por V<sub>L</sub> =  $3,9(P)^{-0.82}$  e T<sub>R</sub> =  $40(P)^{-1.6}$ .

- Os espaçamentos dendríticos primários aumentam progressivamente da interface metal/molde para
  o interior do lingote uma vez que a ação do fluido de refrigeração impõe valores de velocidades,
  taxas de resfriamento e gradientes térmicos bastante elevados próximo à base refrigerada sendo que
  estes diminuem gradativamente durante a solidificação em função do aumento da resistência
  térmica promovida pela formação do metal sólido.
- Os espaçamentos dendríticos experimentais podem ser representados por equações na forma de potência em função da posição, da velocidade de deslocamento da isoterma liquidus ou da taxa de resfriamento fornecidas, respectivamente, por  $\lambda_1 = 18(P)^{0.52}$ ,  $\lambda_1 = 25(V_L)^{-1.1} e \lambda_1 = 45(T_R)^{-0.55}$ .
- A concordância obtida entre os resultados experimentais encontrados para λ<sub>1</sub> e valores teóricos de modelos de crescimento dendrítico primário previstos na literatura e utilizados neste trabalho mostrou-se, de maneira geral, apenas regular.
- Os espaçamentos dendríticos primários da liga analisada são bastante influenciados pela direção de crescimento do sólido. Nas condições de solidificação assumidas, os referidos espaçamentos dendríticos são maiores no caso da solidificação horizontal e menores na solidificação vertical descendente.

## 5. BIBLIOGRAFIA

[1] APPOLAIRE, B., COMBEAU, H., LESOULT, G., "Modeling of equiaxed growth in multicomponent alloys Accounting for Convection and for the Globular/Dendritic Morphological Transition", *Materials Science and Engineering A*, v. 487, pp. 33–45, 2008.

[2] HUNT, J.D., "Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutetic", *Materials Science and Engineering*, v. 65, pp. 75-83, 1984.

[3] KURZ, W., FISHER, J., "Dendrite growth at the limit of stability: tip radius and spacing", *Acta Metallurgica*, v. 29, pp. 11-20, 1981.

[4] GÜNDÜZ, M., ÇADIRLI, E., "Directional solidification of aluminium–copper alloys", *Materials Science and Engineering A*, v. 327, pp. 167–185, 2002.

[5] TAN, L., ZABARAS, N., "A level set simulation of dendritic solidification of multi-component alloys", *Journal of Computational Physics*, v. 221, pp. 9–40, 2007.

[6] ZHU, M.F., STEFANESCU, D.M., "Virtual front tracking model for the quantitative modeling of dendritic growth in solidification of alloys", *Acta Materialia*, v. 55, pp. 1741–1755, 2007.

[7] HUNT, J.D., LU, S.Z., "Numerical modeling of cellular array growth: spacing and structure predictions", *Metallurgical and Materials Transactions A*, v. 27A, pp. 611-623, 1996.

[8] BOUCHARD, D., KIRKALDY, J.S., "Prediction of dendrite arm spacings in unsteady and steady-state heat flow of unidirectionally solidified binary alloys", *Metallurgical and Materials Transactions B*, v. 28B, pp. 651-663, 1997.

[9] ROCHA, O.L., SIQUEIRA, C.A., GARCIA, A., "Heat flow parameters affecting dendrite spacings during unsteady-state solidification of Sn-Pb and Al-Cu alloys", *Metallurgical and Materials Transactions A*, v. 34 A, pp. 995-1006, 2003.

[10] SILVA, J.N., MOUTINHO, D.J., MOREIRA, A.L., *et al.*, "The columnar to equiaxed transition during the horizontal directional solidification of Sn–Pb alloys", *Journal of Alloys and Compounds*, v. 478, pp. 358–366, 2009.

[11] SILVA, J.N., MOUTINHO, D.J., MOREIRA, A.L., *et al.*, "Determination of heat transfer coefficients at metal–mold interface during horizontal unsteady-state directional solidification of Sn–Pb alloys", *Materials Chemistry and Physics*, v. 130, pp. 179–185, 2011.

[12] DONG, H.B., LEE, P.D., "Simulation of the columnar-to-equiaxed transition in directionally solidified Al–Cu alloys", *Acta Materialia*, v. 53, pp. 659–668, 2005.

[13] BADILLO, A., BECKERMANN, C., "Phase-Field Simulation of the Columnar-to-Equiaxed Transition in Alloy Solidification", *Acta Materialia*, v. 54, pp. 2015–2026, 2006.

[14] SPINELLI, J.E., FERREIRA, I.L., GARCIA, A., "Evaluation of heat transfer coefficients during upward and downward transient directional solidification of Al–Si alloys", *Structural and Multidisciplinary Optimization*, v. 31, pp. 241–248, 2006.

[15] SPINELLI, J.E., FERREIRA, I.L., GARCIA, A., "Influence of melt convection on the columnar to equiaxed transition and microstructure of downward unsteady-state directionally solidified Sn–Pb alloys", *Journal of Alloys and Compounds*, v.384, pp. 217–226, 2004.

[16] SANTOS, C.A., QUARESMA, J.M.V., GARCIA, A., "Determination of transient interfacial heat transfer coefficients in chill mold castings", *Journal of Alloys and Compounds*, v. 319, pp. 174–186, 2001.

[17] FERREIRA, I.L., SPINELLI, J.E., NESTLER, B. *et al.*, "Influences of solute content, melt superheat and growth direction on the transient metal/mold interfacial heat transfer coefficient during solidification of Sn–Pb alloys", *Materials Chemistry and Physics*, v. 111, pp. 444–454, 2008.

[18] ROCHA, O.L., SIQUEIRA, C.A., GARCIA, A., "Cellular/dendritic transition during unsteady-state unidirectional solidification of Sn-Pb alloys", *Materials Science and Engineering A*, v. 347, pp. 59-69, 2003.