

Análise dos modelos utilizados para a previsão dos parâmetros microestruturais obtidos durante a solidificação direcional do aço inoxidável austenítico AISI 304

Mirian de Lourdes Noronha Motta Melo

Programa de Pós-Graduação em Eng. e Ciência dos Materiais, Univ. São Francisco-USF. E-mail: mirian.melo@saofrancisco.edu.br

Nilton Henrique Alves Pereira

Programa de Pós-Graduação em Eng. e Ciência dos Materiais, Univ. São Francisco-USF. E-mail: nilton.pereira@cornproducts.com.br

Carlos Antônio de Lima Penhalber

Programa de Pós-Graduação em Eng. e Ciência dos Materiais, Univ. São Francisco-USF. E-mail: carlos.penhalber@saofrancisco.edu.br

Carmo Roberto Pellicieri de Lima

Depart. Eng. de Materiais, Faculdade de Eng. Mecânica, Univ. Est. de Campinas-UNICAMP. E-mail: carmo@fem.unicamp.br

Carlos Alexandre dos Santos

Depart. Eng. Mecânica e Mecatrônica, Faculdade de Eng., Pontifícia Univ. Católica do Rio Grande do Sul-PUCRS
E-mail: carlos.santos@puhrs.br

Resumo

Os espaçamentos interdendríticos primário e secundário são parâmetros microestruturais que exercem significativa influência nas propriedades mecânicas de peças fundidas. Foram testados, através de simulação numérica, diferentes modelos fornecidos pela literatura para a previsão da redistribuição de soluto e dos parâmetros microestruturais em função dos parâmetros térmicos. Os resultados numéricos são confrontados com experimentais obtidos para o aço inoxidável austenítico AISI 304 solidificado direcionalmente, permitindo a determinação dos modelos mais adequados para as condições empregadas. A solidificação direcional foi obtida através de uma coquilha de cobre refrigerada à água colocada na parte inferior de um dispositivo projetado e construído. Foram obtidos os perfis de temperatura, para várias posições a partir da interface metal/coquilha, através do emprego de termopares do tipo S e de um sistema de aquisição de dados computadorizado. Com os perfis térmicos foram determinados os principais parâmetros térmicos do processo de solidificação, isto é, a velocidade de crescimento da ponta da dendrita, o gradiente térmico à frente da isoterma liquidus e a taxa de resfriamento. Para a determinação e quantificação das fases formadas, utilizaram-se microscopia ótica e MEV.

Palavras-chave: Espaçamentos interdendríticos, solidificação, modelagem, aços inoxidáveis.

Abstract

In the case of dendritic structure, the mechanical properties of foundry products depend on the parameters: primary and secondary arm spacings. Therefore, it is very important that the computational programs use reliable equations for correlating the calculated thermal parameters with the obtained interdendritic spacings. This study presents a numerical and experimental analysis of some models for predicting the secondary arm spacings as a function of thermal parameters. The comparison between the numeric and experimental results for stainless steel permits the determination of the adequate equation for unidirectional solidification.

Keywords: Interdendritic spacings, solidification, modeling, stainless steel.

1. Introdução

O crescimento dendrítico é a forma mais comum encontrada em materiais fundidos e o grau de refinamento das dendritas influencia, diretamente, as propriedades mecânicas, na resistência à corrosão e nos tratamentos térmicos posteriores dos produtos fundidos [1,2]. Essas estruturas formam-se com um teor de soluto muito diferente da média da liga. Essa diferença da concentração do centro das dendritas para a região interdendrítica é causada pela diferença de solubilidade entre as fases líquida e sólida. Essa característica tem efeito direto nos tempos de homogeneização [3] e determina as propriedades mecânicas e de corrosão e a sua performance em serviço [4].

Para o caso de ligas metálicas, que apresentam uma estrutura dendrítica, as propriedades dos produtos fundidos dependem dos espaçamentos primários e secundários. Portanto é muito importante, num modelo computacional, para o processo da simulação da solidificação utilizar equações realistas, para correlacionar os parâmetros térmicos calculados com os espaçamentos dendríticos. Para a previsão microestrutural existem vários modelos na literatura para diferentes ligas. Existem modelos empíricos, específicos para determinadas ligas [5, 6], fundamentados, exclusivamente, em resultados experimentais, e os teóricos [7, 8, 9, 10], baseados nos parâmetros térmicos e em relações geométricas. A grande vantagem dos modelos teóricos sobre os empíricos, na previsão microestrutural, é a possibilidade de serem empregados para o estudo para várias ligas em diferentes condições térmicas, sem a necessidade da realização de experimentos. Entretanto a dificuldade de se encontrarem dados de propriedades termofísicas precisas, para a grande maioria das ligas, prejudica a utilização desses modelos. Às vezes, pequenas variações, em certas propriedades, provocam mudanças sensíveis nos parâmetros microestruturais [11].

Analisando os modelos/equações, para previsão microestrutural, encontra-

dos na literatura, nota-se que a grande maioria são para ligas não-ferrosas [5-10]. Já para os aços inoxidáveis são poucos os modelos disponíveis e, em geral, são empíricos, isto é, só são válidos para as faixas de parâmetros térmicos, para os quais foram determinados. Taha e colaboradores [12], através da utilização de solidificação direcional, em ligas de aço com composições descritas na Tabela 1, determinaram os espaçamentos interdendríticos para velocidade de crescimento de 30, 120, 510 mm/h e gradientes de temperatura variando de 13 a 187 K/cm.

Aplicaram a equação proposta por Kurz [8], que correlaciona os espaçamentos interdendríticos com parâmetros térmicos, conforme equação:

$$\lambda_2 = KV^m G^n \quad (1)$$

Onde λ é espaçamento interdendrítico (cm), V é velocidade de crescimento (cm/s) e G é o gradiente térmico (K/s) e determinaram as constantes K , m e n para as composições descritas na Tabela 1:

$$L1: \lambda_2 = 0,0036V - 0,41G - 0,37 \quad (2) \text{ (curva 01)}$$

$$L2: \lambda_2 = 0,0032V - 0,41G - 0,37 \quad (3) \text{ (curva 02)}$$

Taha e colaboradores [12] também utilizaram a equação proposta por Flemings [13], na qual os espaçamentos secundários estão relacionados com o tempo local de solidificação (t_{local}), isto é, o intervalo de tempo gasto entre a passagem das linhas *liquidus* e *solidus* em segundos [14, 8], segundo a equação:

$$\lambda_2 = a.t_{local}^b \quad (4)$$

E determinaram para as constantes a e b para as composições descritas na Tabela 1:

$$L1: \lambda_2 = 0,00058t_{local}^{0,44} \quad (5) \text{ (curva 03)}$$

$$L2: \lambda_2 = 0,00052t_{local}^{0,39} \quad (6) \text{ (curva 04)}$$

Jaime [15], a partir de resultados próprios de solidificação direcional do aço austenítico AISI 316L, estabeleceu uma correlação entre o espaçamento secundário (λ_2) dado em segundos e o tempo local de solidificação (t_{local}), segundo a equação:

e parâmetros de processo de solidificação, segundo a equação:

$$L3: \lambda_2 = 5,48t_{local}^{0,5} \quad (7) \text{ (curva 05)}$$

2. Materiais e métodos

Foram refundidos 3 kg de aço inoxidável AISI 304 com composição química conforme Tabela 2, num forno de indução da divisão de metalurgia do IPT-SP, e, em seguida, vazado numa casca cerâmica à base de zirconita, alojada dentro de um dispositivo projetado e construído para obtenção de solidificação direcional de ligas ferrosas [16]. Esse dispositivo possui resistências elétricas para aquecimento das laterais do molde cerâmico e, para facilitar a extração de calor unidirecional ascendente, possui, na parte inferior, uma coquilha de cobre refrigeradas à água. O dispositivo foi aquecido até 1500°C e, só então, o aço inoxidável fundido foi vazado numa temperatura de 1630°C.

Para a análise dos aspectos macro e microestruturais, as amostras foram preparadas segundo o procedimento: a) na preparação para a macrografia utilizaram-se lixas de grana 180, 220, 400 e 600, em seguida, as amostras foram submetidas a ataque com reagente com Nital (b) na etapa de micrografia, além das etapas descritas anteriormente, foram também usadas pastas de diamante de 15, 6, 1 e

Tabela 1 - Composições das ligas ferrosas analisadas por Taha e colaboradores [12].

Composição da liga (% peso)	Liga
0,63 C - 10,0 Mn - 0,009 Si - 14,9 Ni - 0,095 Al - 0,009 P - 0,00 S	L1
0,63C - 1,1Si - 28,3Cr	L2

0,25 μ m de granulometria e, por último, em alguns casos, foi feito um polimento com sílica coloidal e o ataque foi com o reagente Marble.

Para a simulação da solidificação, foi utilizado um modelo numérico baseado em diferenças finitas, que utiliza o método da entalpia [11, 17, 18]. Esse modelo considera que a solidificação é governada, principalmente, por condução térmica e permite obter os perfis térmicos, as frações de sólido e posição das isoterms *solidus* e *liquidus*. Além disso, determina os principais parâmetros do processo de solidificação: os gradientes térmicos, as velocidades de deslocamento das isoterms, o tempo local de solidificação e as taxas de resfriamento. Após a determinação dos parâmetros térmicos, permite, ainda, através da introdução de equações adequadas, a determinação dos parâmetros estruturais: espaçamentos interdendríticos. Todas as simulações foram com número de malhas de 200 e intervalos de tempo menores do que 0,001s. As propriedades termofísicas utilizadas no modelo numérico para simulação da solidificação são oriundas da literatura [19].

3. Resultados e discussões

O perfil do coeficiente de transferência de calor na interface metal/coquilha no tempo (h_i) foi determinado através do método da comparação de perfis numéricos e experimentais, e obedece à seguinte equação:

$$h_i(t) = 3250t^{0.19} [W/m^2K] \quad (8)$$

A Figura 1 apresenta a variação do coeficiente de transferência de calor na interface metal/coquilha no tempo, que concorda com a literatura [21, 17, 22], isto é, valores muito altos no

início com uma queda abrupta logo nos instantes iniciais do processo de solidificação por causa da formação do “gap”.

A análise matemática da solidificação apresenta dificuldades consideráveis, pois todos os mecanismos de transferência de calor atuam em conjunto e ocorrem em regime transiente. Além disso, outro fato que dificulta a análise é a geração contínua de calor latente na zona pastosa, que está diretamente relacionada com a evolução da fração de sólido durante a solidificação.

A Figura 2 apresenta a variação da temperatura em função da fração de sólido determinada pelo modelo numérico utilizando-se a equação de Scheil [23, 24], e comparada com dados da literatura [25], onde se observa uma boa concordância.

Foram, também, analisados e quantificados, através de MEV/EDS, perfis de redistribuição de soluto entre ramos pri-

Tabela 2 - Composição do AISI 304.

Cr	Ni	Mn	Si	S	C
18,3	8,51	1,94	0,37	0,032	0,032
W	Cu	Ti	Nb	Al	B
0,57	0,03	0,005	0,05	0,005	0,0012
Co	Mo	V	P	N2	
0,2	0,38	0,0788	0,03	0,082	

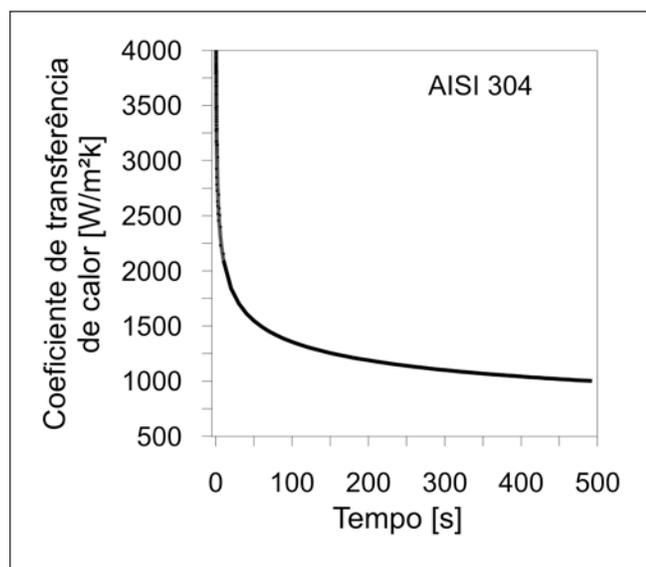


Figura 1 - Perfil do coeficiente de transferência de calor na interface metal/coquilha.

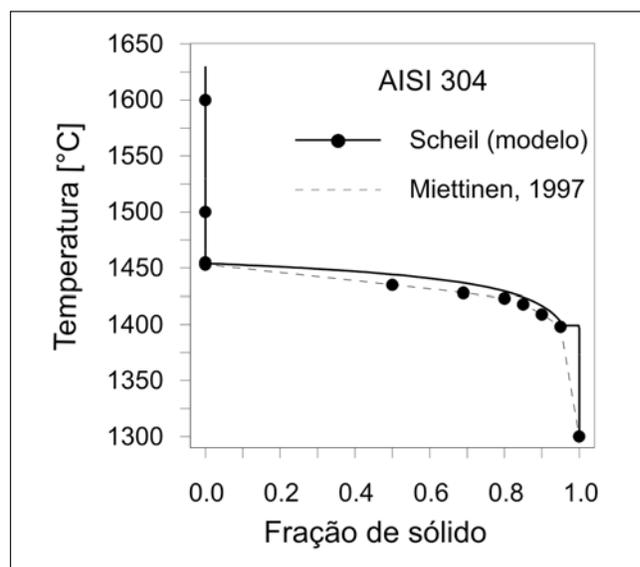


Figura 2 - Variação da temperatura em função da fração de sólido determinada pelo modelo comparada com dados da literatura.

mários e secundários, em diferentes posições, a partir da interface metal/coquilha. Verificou-se que, entre os ramos dendríticos ocorre forte microsegregação de todos os elementos aliados e que, na fase ferrítica, ocorrem picos de níquel e vales de cromo, conforme Figuras 3 (a) e (b).

As Figuras 4 e 5(b, c e d) apresentam, respectivamente, a macrografia e as micrografias do aço inoxidável AISI 304, solidificado direcionalmente. Devido ao fato de o calor ter sido removido pela coquilha, na parte inferior do molde, a macrografia da amostra apresenta grãos alongados, ou seja, grãos colunares em grande extensão do fundido, demonstrando a eficiência do dispositivo para obtenção de solidificação direcional utilizado.

Analisando, ainda, a Figura 5, notam-se claramente, a forte direção preferencial de crescimento com dendritas coluna-

res e uma nítida variação dos espaçamentos interdendríticos com a distância da coquilha. Quanto à microestrutura, percebe-se que há a presença de filmes finos de ferrita (linhas escuras), em matriz austenítica, linhas estas que são denominadas de ferrita vermicular. As microestruturas encontradas indicam que o modo de solidificação é ferrítico-austenítico, ou seja, o processo de solidificação se inicia com precipitação da ferrita e, posteriormente, ocorre a sua transformação em austenita [17,18].

A comparação dos perfis de temperatura e dos parâmetros térmicos simulados através do modelo numérico com os obtidos experimentalmente, apresentou boa concordância [17, 18], que é uma condição básica para a análise da precisão das equações para a previsão microestrutural.

A Figura 6 apresenta as medidas experimentais para λ_2 ,

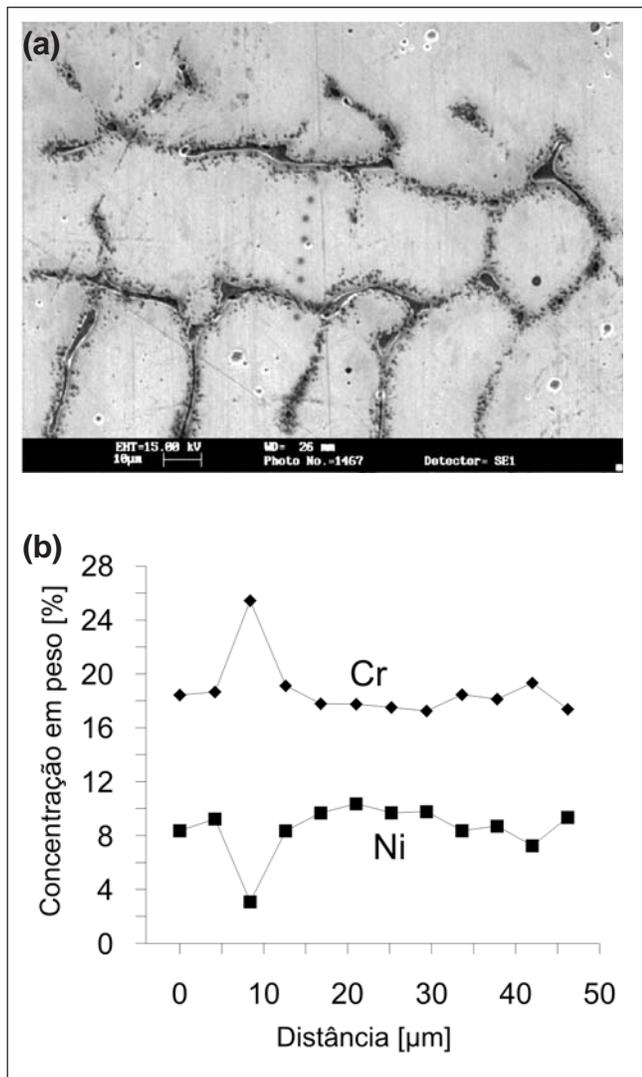


Figura 3 - (a) Micrografia obtida por MEV do aço AISI 304 solidificado unidirecionalmente. (b) - Perfil de concentração de soluto entre ramos dendríticos secundários.

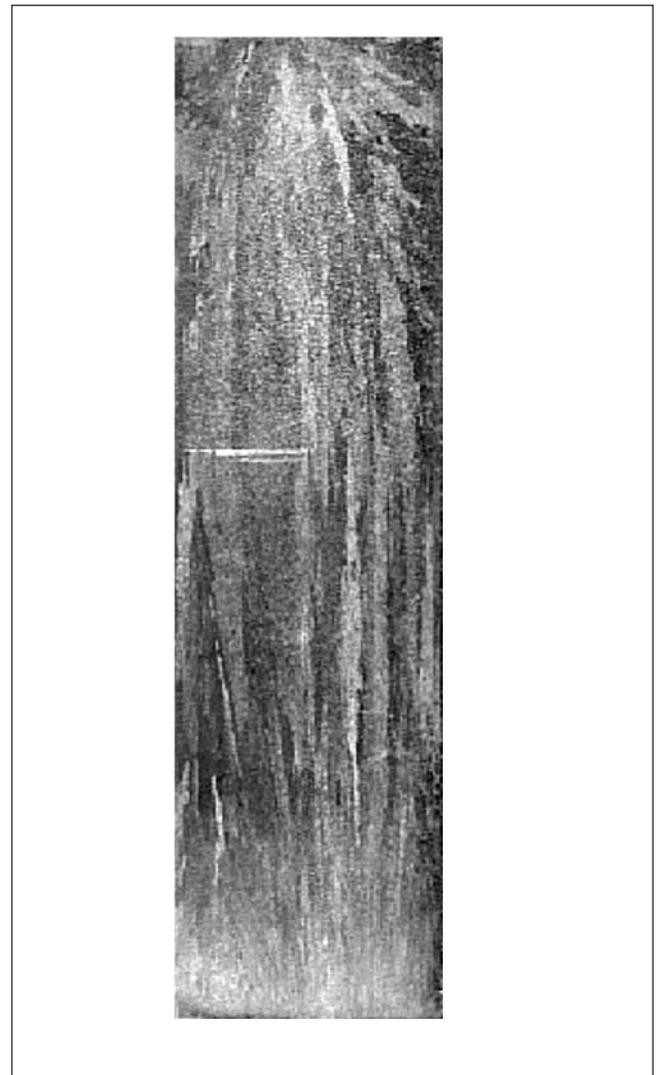


Figura 4 - Macroestrutura do aço inoxidável AISI 304 solidificado unidirecionalmente. Aumento: 1x. Ataque Nital.



Figura 5 - Micrografias do aço inoxidável AISI 304 solidificado unidirecionalmente, seção longitudinal mostrando a variação dos espaçamentos com a distância da coquilha de cobre refrigerada. Ataque Marble. (a) Distante 30 μm da coquilha. (b) Distante 10 μm da coquilha. (c) Distante 1 μm da coquilha.

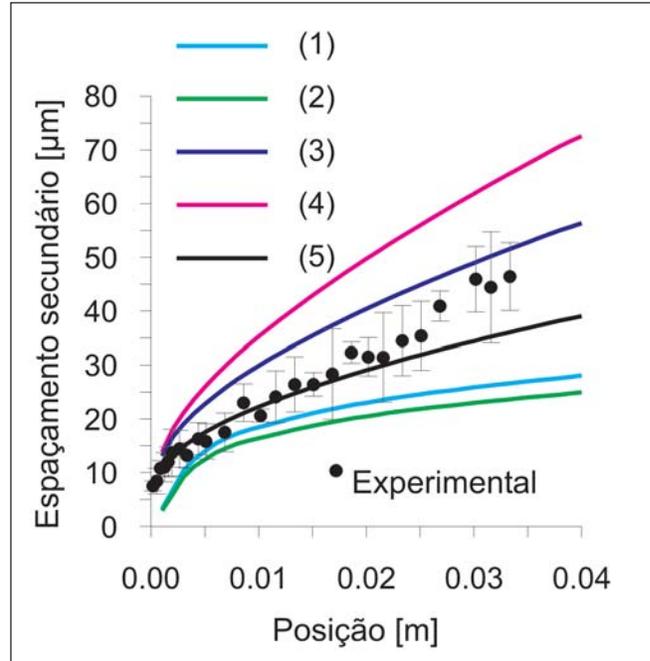


Figura 6 - Curvas de espaçamento dendrítico secundário para os modelos da literatura comparados com os resultados experimentais em função da distância da coquilha.

obtidas nesse trabalho, com os resultados das simulações numéricas, utilizando os modelos/equações empíricas já apresentadas [12, 15].

Analisando os resultados apresentados na Figura 6, nota-se que os modelos empíricos apresentados por Taha e colaboradores, baseados nos parâmetros térmicos V e G (curvas 1 e 2), subestimaram os valores de λ_2 . Por outro lado, os modelos apresentados por Taha e colaboradores, baseados no t_{local} , superestimaram (curvas 3 e 4) os valores de λ_2 .

Observa-se, ainda, que, pelos resultados apresentados na Figura 6, entre os modelos testados, o que melhor descreve os resultados experimentais foi o proposto por Jaime [15].

4. Conclusões

A metodologia utilizada, na realização dos experimentos associada à utilização de valores de propriedades adequadas e a determinação de valores coerentes para o coeficiente de transferência de calor variável no tempo possibilitaram uma boa concordância entre os resultados numéricos e experimentais, para os parâmetros térmicos, que é uma condição básica para a análise da precisão das equações para a previsão microestrutural.

Os ensaios de MEV/EDS, entre os ramos dendríticos, mostraram que ocorre forte microsegregação de todos os elementos avaliados e que, na fase ferrítica, ocorrem picos de níquel e vales de cromo.

Observou-se que a utilização de uma determinada equação influencia diretamente no cálculo da liberação de calor latente e no cômputo da rejeição de soluto durante a solidificação. Considerando tais fatores, a equação da literatura que melhor descreve a rejeição de soluto e a fração de sólido com a temperatura é a de Scheil [23].

O modelo numérico desenvolvido permitiu que fossem testadas várias equações para a previsão dos espaçamentos secundários (λ_2).

Para o caso de solidificação unidirecional vertical do aço inoxidável AISI 304, verificou-se que a equação que melhor descreve a evolução dos espaçamentos secundários é a equação de Jaime [15].

5. Agradecimentos

Esse trabalho foi realizado com apoio da FAPESP 02/02060-6.

6. Referências bibliográficas

- OKAMOTO, T., KISHITAKE, K. Dendritic structure in unidirectionally solidified aluminium, tin, and zinc base binary alloys. *J. Crystal Growth*, v.29, p.137-146, 1975.
- LIN, X., HUANG, W., DING, G., ZHOU, Y. History-Dependent Selection of Primary Dendritic Spacing During Unidirectional Solidification of Al-4,5%Cu Alloy. In: *Proceedings of 4th Decennial International Conference on Solidification Processing*. Sheffield, 1997. p.413-416.
- PRATES, M., DAVIES, G.J. *Solidificação de metais e suas ligas*. Rio de Janeiro, ED. Livros Técnicos e Científicos, 1978.
- KRAFT, T., CHANG, Y. A. Discussion of effect of dendrite arm coarsening on microsegregation. *Metallurgical and Materials Transactions A*, v. 29 A, n. 9, p. 2447-2450, 1998.
- YOUNG, K.P., KIRKWOOD, D.H. The dendrite arm spacing of aluminum-copper alloys solidified under steady-state conditions. *Metallurgical Transactions*, v.6 A, p.197-205, 1975.
- BOWER, T.F., BRODY, H.D., FLEMINGS, M.C. Measurements of solute redistribution in dendritic solidification. *Trans. Metall. Soc. AIME*, v. 236, p. 624-634, 1966.
- HUNT, J.D. *Solidification and casting of metals society*, London, p.3, 1979.
- KURZ, W., FISHER, D.J. *Fundamentals of Solidification*. 3ed. Switzerland, Trans Tech Publications, 1992.
- TRIVEDI, R. Interdendritic spacing: Part II. A Comparison of theory and an experiment. *Metallurgical Transactions*, v.15 A, p.977-982, 1984.
- FEURER, U. Influence of alloy composition and solidification conditions on dendrite arm spacing, feeding and hot tearing properties of aluminium alloys. In: *Proceedings The Symposium on Quality Control of Engineering Alloys*, Delft, 1977. p.131-145.
- MELO, M.L.N.M., RIZZO, E. M. S., SANTOS, R. G. Prediction of dendrite arm spacing and its effect on microporosity formation in directionally solidified Al-Cu alloy. *Journal Materials Science*, v.40, p.1-11, 2005.
- TAHA, M.A., EL-MAHALLAWY, N.A., ASSAR, A.W.M., HAMMOUDA, R.M. Effect of melt superheat and chill material on interfacial heat transfer coefficient in end-chill Al and Al-Cu alloys casting. *Journal of Materials Science*, v.27, p. 3467, 1992.
- FLEMINGS, M.C. *Solidification Processing*. New York, Ed. McGraw-Hill, 1974.
- GARCIA, A. *Solidificação dos metais: fundamentos e aplicações*. Editora da Unicamp, 2001.
- JAIME, M.A. *Avaliação e otimização de processos de fundição a partir do uso de técnicas computacionais de simulação*. FEM-UNICAMP: 2002. (Tese de Doutorado em Engenharia Mecânica).
- MELO, M.L.N.M., MADIUTO, P.F., DAVELLI, C.D., MASSAK, M.V., GODOY, C., FRANCISCON VAZ, J.A., VASSOLERI, E.N., GODOI, R. S. Projeto e construção de um dispositivo para a obtenção de solidificação direcional de ligas ferrosas. In: SEMINÁRIO DE FUSÃO, REFINO E SOLIFICAÇÃO DOS METAIS, 35. Salvador: Associação Brasileira de Metalurgia e Materiais (ABM), 2004. p.1-10.
- MELO, M. L. N. M., SANTOS, C.A., PENHALBER, C.A.L. Determinação numérica/experimental do coeficiente de transferência de calor na interface metal / molde durante a solidificação do aço inoxidável AISI 304. *Revista Matéria*. v.10, n.1, p.545-557, 2005.
- MELO, M. L. N. M., SANTOS, C.A., LIMA C.P. Efeito da taxa de resfriamento sobre a microestrutura formada durante a solidificação direcional de um aço Inoxidável austenítico. In: CONGRESSO BRASILEIRO DE ENGENHARIA E CIÊNCIAS DOS MATERIAIS-CBECIMAT, 16. Porto Alegre, 2004. p.1-10.
- PEHLKE, R.D., JAYARAJAN, A; WADA, H. *Summary of thermal properties for casting alloys and mold materials*. University of Michigan, Ann Arbor, MTIS-PB83-211003, 1982.
- KIM, J.H., LIM, I.C., YANG, H. Comparison of four different latent heat models during the phase-change process. *AFS Transactions*, v.92, p.947-954, 1992.
- KRISHNAN, M., SHARMA, D.G.R. Determination of the interfacial heat transfer coefficients h in unidirectional heat flow by Beck's nonlinear estimation procedure. *International Communications on Heat Mass Transfer*, v.23, p.203, 1996.
- MARTORONO, M.A., CAPOCCHI, J.D.T. Heat transfer coefficient at the metal mould interface in the unidirectional solidification of Cu-8% Sn alloys. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, v.43, p.2541, 2000.
- SCHEIL, E. *METALLURGIEN*. v. 34, p. 7072, 1942 apud GARCIA, A. *Solidificação: fundamentos e aplicações*. Campinas: ED. UNICAMP, 2001.
- BATHE, T.P., PEHLKE, R.D. Equilibrium partition coefficients in iron-based alloys. *Metallurgical Transactions B*, v. 20B, p.149-160, 1989.
- MIETTINEN, J. Calculation of simulation-related thermophysical properties for steels. *Metallurgical Transactions B*, v.28, p. 281-297, 1997.

Artigo recebido em 30/07/2006 e aprovado em 05/10/2006.