

## Caracterização da microestrutura bruta de fusão da liga Al-40%Zn com adição de dois teores de Cu produzidas por solidificação unidirecional em regime transiente de transferência de calor

R. de S. Victor\*, D.M. Rosa

Programa de pós-graduação em Ciências Mecânicas, Departamento de Engenharia Mecânica, Faculdade de Tecnologia, Universidade de Brasília (UnB), Campus Universitário Darcy Ribeiro, CEP 70910-900, Asa Norte, Brasília - DF.

(recebido em 13-06-2019 ; aceito em 06-08-2019)

[\\*rayssavictor1@gmail.com](mailto:*rayssavictor1@gmail.com)

(Todas as informações contidas neste artigo são de responsabilidade dos autores)

### Resumo:

As ligas de alumínio são parte de importantes componentes estruturais e a incorporação de elementos de liga, como o Cu, ao sistema Al-Zn tende a promover melhorias nas propriedades mecânicas. Portanto, o objetivo desse trabalho consiste em estudar a solidificação unidirecional vertical ascendente em regime transiente de fluxo de calor das ligas Al-40%Zn-2,0%Cu e Al-40%Zn-3,0%Cu (% em peso), correlacionando as variáveis térmicas com os parâmetros microestruturais, e verificando a influência do teor de cobre nas propriedades das ligas. A microestrutura é caracterizada como dendrítica ao longo de todas as alturas analisadas, e observa-se uma diminuição dos valores obtidos experimentalmente para VL,  $\dot{T}$  e GL com o avanço da isoterma *liquidus*, o que ocasiona um aumento nos espaçamentos dendríticos conforme afasta-se da chapa molde. Observa-se ainda que as maiores  $\dot{T}$  e VL somadas a um teor de cobre mais elevado atuando como reforço acarretam maiores valores de microdureza para a liga Al-40%Zn-3%Cu.

**Palavras-chave:** Solidificação unidirecional ascendente; Ligas Al-Zn-Cu; microestrutura; Espaçamento dendrítico; Ligas de alumínio.

### Abstract:

Aluminum alloys are part of important structural components and the incorporation of alloying elements, such as Cu, into the Al-Zn system tends to promote improvements in mechanical properties. Therefore, the objective of this work is to study the vertical unidirectional upward solidification in a transient regime of Al-40% Zn-2.0% Cu and Al-40% Zn-3.0% Cu (% by weight) alloys, correlating the thermal variables with the microstructural parameters, and verifying the influence of the copper content on the properties of the alloys. The microstructure is characterized as dendritic throughout all the analyzed heights, and it is observed a decrease of the values obtained experimentally for VL,  $\dot{T}$  and GL with the advance of *liquidus* isotherm, which causes an increase in the dendritic spacings as it departs from the plate mold. It is also observed that the higher  $\dot{T}$  and VL added to a higher copper content acting as reinforcement lead to higher values of microhardness for Al-40% Zn-3% Cu alloy.

**Keywords:** Ascending unidirectional solidification; Al-Zn-Cu alloys; Microstructure; Dendritic spacing; Aluminum alloys.

### Introdução

A diversidade de opções em relação ao uso de materiais, somados com o apelo pela inovação tecnológica e a competitividade industrial, que demandam a conciliação entre desempenho e baixos custos de produção, desafiam a engenharia de materiais na atualidade pela escolha adequada do tipo de material para as mais diversas aplicações, levando em consideração as variações e características físicas de cada um. Nesse contexto, destaca-se a importância do campo da metalurgia, levando em consideração que todos os metais passam em algum momento do seu processamento por um processo de fusão e solidificação, com exceção das peças sinterizadas (metalurgia do pó). Isso ocorre

porque, desde que o ponto de fusão do material não seja muito elevado, a fundição consiste na rota mais econômica para conformação de uma peça metálica [1-4].

As características mecânicas do material dependem das condições assumidas no processo de solidificação, uma vez que fatores como orientação preferencial de crescimento, morfologia dos grãos e espaçamentos interdendríticos, irão determinar a formação da macro e microestrutura do material (o que, por sua vez, influenciará nas propriedades apresentadas pelo material). Nesse contexto, destaca-se a relevância do entendimento da formação das microestruturas de solidificação em condições de fluxo de calor transitório

(no qual a velocidade de solidificação e o gradiente térmico são interdependentes e variam continuamente ao longo do processo), uma vez que essa é a condição mais conduzida nos processos industriais que envolvem a solidificação, o que dificulta a análise da evolução das alterações microestruturais [5,6].

Na grande maioria das situações práticas de solidificação utiliza-se ligas metálicas ao invés de elementos puros visando ampliar o espectro de características físicas e mecânicas a serem apresentadas pelo material [7]. A liga Al-40%Zn-x%Cu (% em peso e x variando de 1 a 5% de Cu) tem sido relatada na literatura como uma possível substituta das ligas zinco-alumínio monotetóides (matriz constituída por Zn), uma vez que em comparação as demais composições (eutética e eutetóide), elas tem se mostrado superiores no que diz respeito à sua dureza e resistência. Adicionalmente, a adição de mais de 2% de Cu tem causado um problema de instabilidade dimensional em ligas cuja matriz é o zinco em decorrência da decomposição da fase  $\epsilon$  ( $\text{CuZn}_4$ ) por uma reação de quatro fases ( $\alpha + \epsilon \rightarrow \text{T}' + \eta$ ), o que pode ser superado através da substituição da matriz de zinco pelo alumínio devido a formação da fase estável  $\theta$  ( $\text{CuAl}_2$ ) durante a solidificação, ao invés de apenas a fase  $\epsilon$  metaestável. Além disso, geralmente observa-se uma melhora na ductilidade dessas ligas a partir dessa substituição [8-12].

Os estudos encontrados realizados com ligas ternárias à base de Al contendo Zn e adições de Cu indicaram que a adição desse elemento ao sistema promove uma melhoria nas propriedades mecânicas, sendo os resultados mais expressivos obtidos para as ligas Al-40%Zn-x%Cu (denominadas monotetóides), fazendo-se, portanto, necessário, o estudo da influência das condições de solidificação nas propriedades apresentadas pelo material e o conhecimento do efeito da adição de diferentes teores de Cu na microestrutura e no desempenho mecânico das ligas. Sendo assim, o objetivo do trabalho é estudar a solidificação unidirecional ascendente das ligas ternárias Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu em regime transiente de transferência de calor, verificando a influência da modificação da altura ao longo do lingote (o que pode ser obtido através de termopares em diversas alturas que fazem o monitoramento térmico do processo) e da mudança do teor de cobre nas propriedades térmicas, microestruturais e nos valores de microdureza apresentados.

### Materiais e Métodos

As ligas com composição nominal de Al-40%Zn-3,0%Cu e Al-40%Zn-2,0%Cu (% em peso), foram preparadas a partir de materiais comercialmente puros em um forno tipo mufla e a fusão foi realizada em cadinhos de carbetto de silício previamente revestido com material refratário, cimento a base fibra cerâmica sílico-aluminosa QF-180. Foi retirada uma amostra de cada liga produzida in-situ para análise da composição química por Espectroscopia de fluorescência de raios-x (Shimadzu EDX-XDF 720) e as composições químicas

(% em peso) obtidas para as ligas estudadas encontram-se expressas na Tabela I.

Tabela I - Composição química das ligas obtidas via Espectroscopia de fluorescência de raios-x (FRX).

LIGAS	COMPOSIÇÃO (% EM PESO)							
	Al	Zn	Cu	Fe	Ca	K	Cr	Ni
AL-40%Zn-2%Cu	58,97	38,38	1,74	0,69	0,22	-	-	-
AL-40%Zn-3%Cu	57,37	38,88	2,99	0,39	-	0,27	0,07	0,03

O registro da variação térmica dentro do processo foi realizado através de termopares tipo K (alumel-chromel) com isolamento mineral e diâmetro de 1,5 mm que foram inserido no interior do metal líquido, do aquisitor de dados da National Instruments modelo Hi-Speed USB Carrier, com configuração que permite leitura e aquisição direta de dados e do software Labview Signal Express, do mesmo fabricante, que realiza as medições em tempo real dos termopares e as transforma em dados digitais. A aferição da temperatura *liquidus* da liga TL (temperatura na qual o metal inicia uma liberação de calor latente para que a solidificação seja realizada), foi efetuada por meio de um termopar inserido no interior do cadinho após a liga ter sido homogeneizada.

Uma vez obtida a temperatura *liquidus* da liga TL, realizou-se o monitoramento da temperatura da liga no interior do cadinho e quando a mesma atingiu uma temperatura próxima de 15% acima da temperatura *liquidus* (de tal forma a permitir uma margem para que após a retirada do termopar e manuseio do cadinho até a lingoteira, a liga ainda se encontrasse em uma temperatura superior a TL), a liga fundida, isenta de óxido e gases, foi vertida suficientemente para completar o volume da lingoteira.

Um dispositivo de solidificação unidirecional com capacidade de retirar calor de forma vertical ascendente da base do lingote por meio do contato térmico do metal líquido com a chapa molde fabricada em aço AISI 1020 com 3mm de espessura foi utilizado para solidificar as ligas e obtenção dos lingotes. O dispositivo foi revestido com material refratário, cimento a base fibra cerâmica sílico-aluminosa QF-180, para garantir o isolamento térmico (evitando perdas de calor pela lateral) e a chapa molde foi refrigerada à água com vazão controlada durante todo o processo de solidificação, garantindo a manutenção da mesma a temperatura ambiente. Uma vez que a solidificação se processa em sentido contrário ao da ação da gravidade, o peso próprio do lingote atua no sentido de favorecer o contato térmico com a base refrigerada ocasionando o resfriamento da liga.

Após a fusão e solidificação, o lingote foi seccionado para as caracterizações, utilizando, para tal, técnicas metalográficas (o que envolve o embutimento, lixamento e polimento para obtenção de amostras planas e sem marcas superficiais). Para revelar a microestrutura complementou-se as técnicas metalográficas através do ataque químico Keller modificado (950ml H<sub>2</sub>O, 25 ml HNO<sub>3</sub>, 15 ml HCL, 10 ml HF) de acordo com a ASM

Metals Handbook [13], o que permitiu a aquisição de imagens e medição de espaçamentos dendríticos ( $\lambda_1$  e  $\lambda_3$ ).

### Caracterizações

Os lingotes obtidos para as duas composições foram seccionados e as amostras foram preparadas metalograficamente e atacadas com o reagente químico Keller modificado (7M Dix-Keller's reagente) e submetidas a caracterização microestrutural por microscopia óptica (utilizando o microscópio óptico Olympus BX51) e microscopia confocal (utilizando o Microscópio confocal a Laser Olympus Lext OLS 4000), permitindo a obtenção de imagens de alta resolução das amostras e registro da estrutura dendrítica, além da determinação dos espaçamentos dendríticos ( $\lambda_1$ ,  $\lambda_3$ ) a partir das cinco posições as quais os termopares se encontravam em relação a chapa/molde.

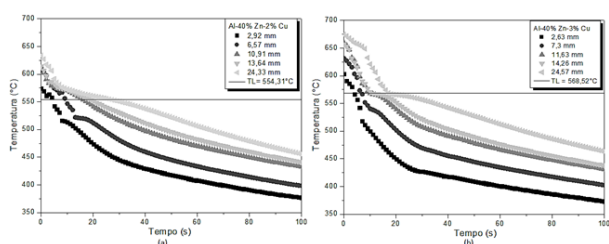


Figura I - Curva de resfriamento correspondente aos termopares posicionados no interior da lingoteira durante o processo de solidificação unidirecional para: a) liga Al-40%Zn-2%Cu e b) liga Al-40%Zn-3%Cu.

Para a medição direta dos espaçamentos dendríticos primários  $\lambda_1$  (realizada sobre a seção transversal perpendicular ao fluxo de calor da amostra) utilizou-se o método do triângulo proposto por Gündüz e Çadirlı [14], que aplica o critério de vizinhança que considera o valor do espaçamento  $\lambda_1$  igual a distância média entre o centro geométrico das dendritas. Para quantificação dos espaçamentos dendríticos terciários  $\lambda_3$  que surgem com o aumento no grau de superresfriamento constitucional utilizou-se o método empregado por autores como McCartney e Hunt [15], Sá et al. [16] e Rosa et al. [17] que baseia-se no cálculo do valor de  $\lambda_3$  pela média das distâncias entre os braços adjacentes ao longo do comprimento “n” sobre a seção transversal do lingote, aproximadamente no mesmo sentido da ramificação dendrítica primária. Efetuou-se, no mínimo, 70 medições para cada posição analisada e ao término das medições calculou-se a média dos valores e o respectivo intervalo de dispersão.

As ligas também foram caracterizadas por meio da técnica de difração de raios-x (DRX), na qual retirou-se amostras nas alturas correspondentes aos termopares situados ao longo do lingote no sentido transversal ao fluxo de calor. Objetivou-se, com essa análise, a determinação das fases presentes nas ligas obtidas experimentalmente neste trabalho. Para tal, utilizou-se o difratômetro de raios-x da marca Rigaku modelo Ultima IV, com varredura entre 10 a 95°, passo angular de 0,02° e velocidade de varredura de 2°/min.

Para caracterização mecânica, o método de dureza utilizado foi o de microdureza Vickers, utilizando, para tal, o microdurômetro da EmcoTest modelo DuraScan 20. Utilizou-se no ensaio uma carga de 50gf com tempo de aplicação total de 15s [9]. Foram realizadas 20 indentações para cada posição ao longo de todas as alturas dos termopares no sentido transversal ao fluxo de calor, respeitando a norma ASTM E384-08 [18].

### Resultados e Discussões

#### Determinação das variáveis térmicas de solidificação

Para cada lingote solidificado das ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu foram obtidas as curvas de resfriamento (exibidas na Figura I) referentes ao registro térmico do processo considerando as cinco posições referentes aos termopares inseridos na lingoteira. Nessas curvas destaca-se a temperatura *liquidus* (TL), na qual observa-se a formação dos primeiros núcleos de solidificação, sendo esses valores de 554,31°C e 568,52°C para as ligas com 2 e 3% de cobre, respectivamente. Vale salientar que a partir dos dados obtidos por meio da curva de resfriamento, determinou-se experimentalmente as variáveis térmicas do processo, como posição da isoterma *liquidus* (VL), velocidades de deslocamento da isoterma *liquidus* (VL), as taxas de resfriamento ( $\dot{T}$ ) e os gradientes térmicos (GL) para ambas as ligas.

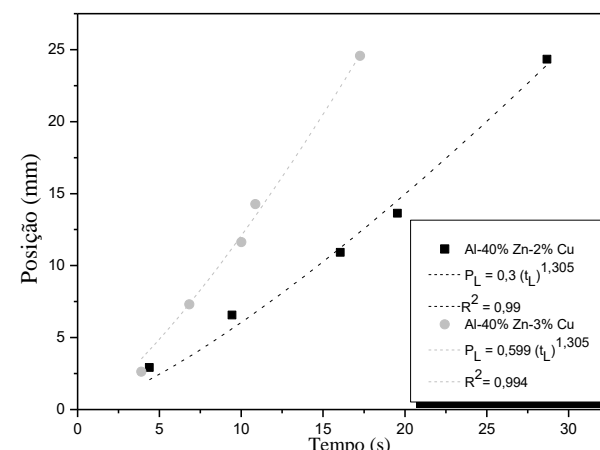


Figura II - Passagem da isoterma *liquidus* em função do tempo por posições estratégicas do lingote, para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu solidificadas unidirecionalmente e suas leis experimentais.

A partir das curvas de posição da isoterma *liquidus* exibidas na Figura II pode-se constatar que, para uma mesma liga, quanto mais próximo da chapa/molde estiverem posicionados os termopares, menores serão os tempos necessários para passagem da isoterma em função da transferência de calor facilitada nessas posições. Já conforme aumenta-se a distância, observa-se a criação de uma camada de metal solidificada que dificulta a extração de carga térmica, implicando em velocidades mais baixas de extração de calor. Além disso, quando compara-se as duas ligas foco do estudo do trabalho, observa-se uma diferença no tempo de passagem da isoterma para todas as posições, sendo os tempos apresentados para a liga com 3% Cu menores

quando comparados com os valores obtidos para a liga com 2%Cu, o que pode ser atribuído a uma influência mais acentuada quando adiciona-se um maior teor de Cu sobre a molhabilidade da liga na chapa molde. Ou seja, a adição de um maior teor de Cu proporciona um melhor contato entre o metal líquido e o molde refrigerado, resultando em um resfriamento mais rápido e eficaz, o que é comprovado pelos maiores valores de  $\dot{T}$  e VL observadas para essa liga, o que foi observado de forma análoga para outros sistemas nos trabalhos [19,20]. Além disso, o ajuste em forma de potência ( $P=a.tLb$ ) proposto é bastante apropriado para representar a correlação entre t e P, uma vez que o R2 ficou acima de 0,99.

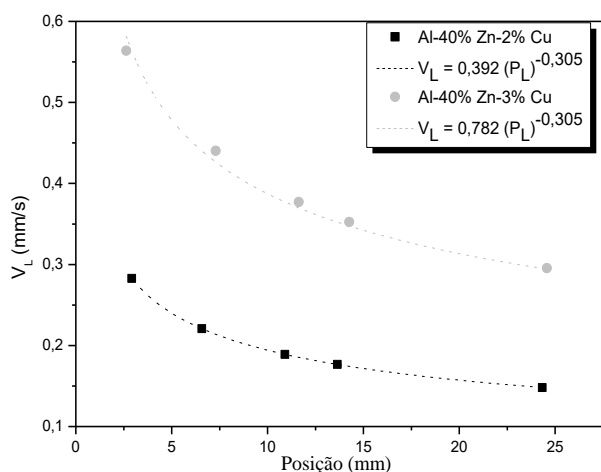


Figura III - Comparação das velocidades das isoterma *liquidus* em função da posição para as ligas em estudo.

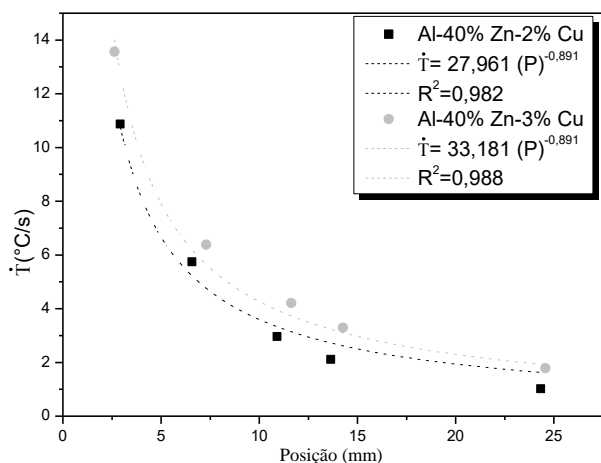


Figura IV - Taxa de resfriamento experimental em função da posição da isoterma *liquidus*, para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu solidificadas no dispositivo unidirecional vertical ascendente.

A velocidade de deslocamento da isoterma *liquidus* (VL), expressa na Figura III, representa a rapidez com que a frente de solidificação avança ao longo do material, sendo obtida através da derivada da função P(t). Observa-se a redução na velocidade para ambas as ligas conforme a solidificação se processa, em decorrência da resistência térmica ocasionada pela camada solidificada, o que reduz a transmissão de energia no material, conforme observado por [21].

Comparando as duas ligas em estudo, observou-se que a liga com maior teor de cobre apresenta maiores valores de velocidade de deslocamento as isoterma *liquidus*, o que pode ser atribuído a temperatura de vazamento do material, que foi apenas ligeiramente superior a *liquidus*, o que pode ter implicado na existência de núcleos já no início do processo de solidificação, e, dessa forma, um maior o teor de soluto implicou em uma facilidade na passagem da isoterma ao longo do lingote, acarretando maiores velocidades de deslocamento e taxas de resfriamento para esse percentual.

A Taxa de resfriamento ( $\dot{T}$ ), exibida na Figura IV, faz alusão à redução observada na temperatura em função do tempo, ou seja, a quantidade de calor que está sendo extraído da peça em um determinado instante do processo de solidificação, sendo obtida experimentalmente através da interseção da reta de temperatura *liquidus* (TL) com as curvas de resfriamento para cada posição dos termopares, através do resultado do quociente da leitura direta das temperaturas imediatamente anteriores e posteriores a TL e dos tempos correspondentes. Assim como observado para as curvas de VL, a  $\dot{T}$  também apresenta um perfil decrescente conforme aumenta-se a distância da interface metal/molde, o que ocorre em função da formação de uma camada solidificada aumentando a resistência térmica do sólido dificultando a passagem de calor e, conseqüentemente, diminuindo os valores dessas variáveis térmicas. Vale salientar que a literatura mostra que os espaçamentos dendríticos diminuem com o aumento da velocidade de solidificação e da taxa de resfriamento, então sistemas de solidificação que favoreçam essas condições devem em princípio contribuir para a obtenção de produtos de melhor resistência mecânica [22].

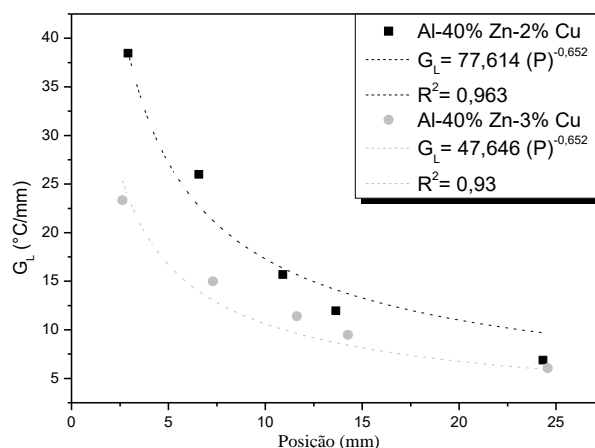


Figura V - Comparação dos gradientes térmicos em função da posição para as ligas em estudo.

O gradiente térmico à frente da interface sólido/líquido (GL), expresso na Figura V, por sua vez, indica a forma como a temperatura está distribuída por unidade de comprimento (consistindo, portanto, na diferença da temperatura da parte sólida em relação à parte ainda no estado líquido), sendo obtidos a partir dos valores experimentais da velocidade da isoterma *liquidus*

e da taxa de resfriamento. Vale salientar que esse gradiente, assim como a velocidade de solidificação, tende a decair com o decorrer do processo, uma vez que tende sempre ao equilíbrio de temperatura.

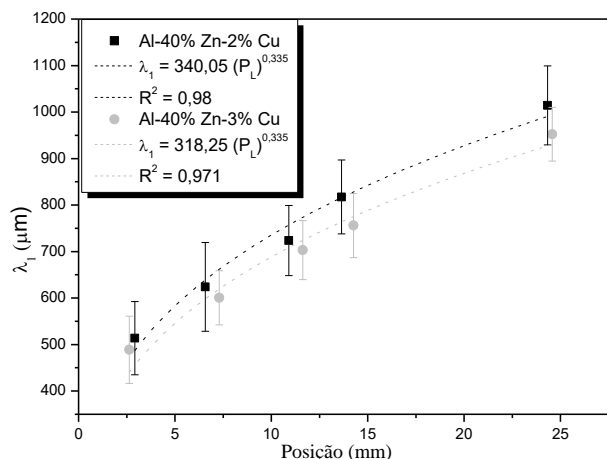


Figura VI - Espaçamento dendrítico primário  $\lambda_1$  em função da posição relativa a chapa-molde e leis experimentais para as duas ligas em estudo.

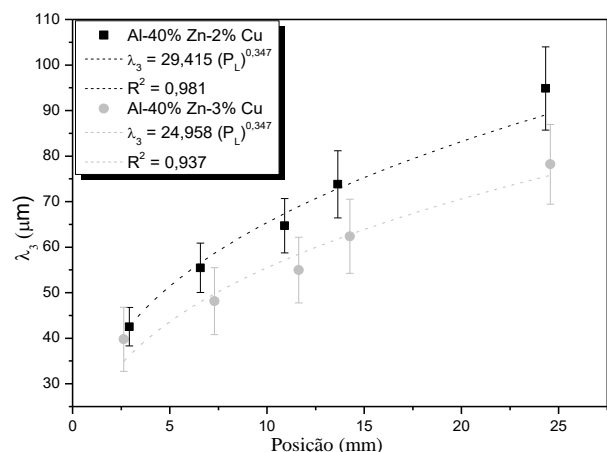


Figura VII - Espaçamento dendrítico terciário  $\lambda_3$  em função da posição relativa a chapa-molde e leis experimentais para as duas ligas em estudo.

**Caracterização microestrutural por Microscopia Confocal**

A Tabela II exhibe 10 imagens das microestruturas transversais nas posições

correspondentes às alturas dos termopares para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu, sendo essas imagens associadas com os parâmetros térmicos (como VL e  $\dot{T}$ ) e seus espaçamentos dendríticos ( $\lambda_1$  e  $\lambda_3$ ) e registradas com aumento de 50x para estabelecer critérios comparativos. Observa-se uma microestrutura dendrítica caracterizada pela presença de braços primários e terciários e que se torna mais refinada para as posições mais próximas a chapa/molde, onde constata-se as maiores velocidades e taxas de resfriamento, o que correlaciona-se com o aumento da resistência térmica em função da camada solidificada formada, que implica em um perfil de formação dendrítica crescente ao longo do lingote, com aumento nos espaçamentos dendríticos conforme afasta-se da chapa molde.

As Figuras VI e VII exibem os valores das leis experimentais dos espaçamentos dendríticos ( $\lambda_1$  e  $\lambda_3$ ) para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu em função da posição dos termopares em relação a chapa/molde, sendo a barra de erro uma representação do desvio padrão obtido pelas 70 medições realizadas para cada posição pelo método proposto por Gündüz e Çadirli [14]. Através de uma análise desses resultados, observa-se que os espaçamentos dendríticos são mais refinados nas posições mais próximas da base refrigerada em função da rápida extração de calor promovida pela passagem de água e consequente contato do metal líquido com a chapa-molde refrigerada, e, conforme se distancia dessa região, as dendritas se tornam cada vez mais grosseiras em função da extração de calor não tão eficaz e inércia térmica observada no seio da massa líquida.

Comparando os resultados encontrados para as duas composições nominais das ligas em estudo, observa-se que a variação estudada no teor de soluto não alterou de forma significativa os valores dos espaçamentos, apesar de observar uma tendência de diminuição nos espaçamentos para a liga com o maior teor de soluto. Essa tendência pode ser atribuída a potencialização da rejeição de soluto, que favorece a obtenção de menores espaçamentos, conforme também foi verificado por Sharp e Hellawell [23], Spittle e Lloyd [24], Osorio et al. [25] e Garcia [26]. As curvas representam as leis experimentais obtidas a partir dos pontos obtidos e ajustados por uma função de potência, onde o fator de correlação obtido foi acima de 0,9.

Tabela II - Microestrutura transversal ao fluxo de calor  $\lambda_1$  e  $\lambda_3$  para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu.

AL-40%ZN-2%CU – ( $\lambda_1$ )		AL-40%ZN-3%CU – ( $\lambda_1$ )	
	<p>Posição: 2,92mm  <math>V_L=0,28\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 10,87^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 38,45^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 513,66\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 42,53\mu\text{m}</math></p>		<p>Posição: 2,63mm <math>V_L=</math>  <math>0,58\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 13,57^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 23,31^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 488,71\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 39,79\mu\text{m}</math></p>
	<p>Posição: 6,57mm  <math>V_L=0,22\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 5,74^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 26^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 623,92\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 55,46\mu\text{m}</math></p>		<p>Posição: 7,3mm <math>V_L=</math>  <math>0,43\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 6,39^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 14,98^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 600,52\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 48,13\mu\text{m}</math></p>
	<p>Posição: 10,91mm <math>V_L=</math>  <math>0,19\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 2,97^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 15,68^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 723,57\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 64,7\mu\text{m}</math></p>		<p>Posição: 11,63mm <math>V_L=</math>  <math>0,37\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 4,21^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 11,38^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 703,16\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 54,98\mu\text{m}</math></p>
	<p>Posição: 13,64mm <math>V_L=</math>  <math>0,18\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 2,11^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 11,96^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 817,42\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 73,81\mu\text{m}</math></p>		<p>Posição: 14,26mm <math>V_L=</math>  <math>0,35\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 3,29^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 9,48^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 756,07\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 62,38\mu\text{m}</math></p>
	<p>Posição: 24,33mm <math>V_L=</math>  <math>0,15\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 1,02^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 6,88^\circ\text{C/mm}</math>  <math>\lambda_1= 1014,36\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 94,85\mu\text{m}</math></p>		<p>Posição: 24,57mm <math>V_L=</math>  <math>0,29\text{mm/s}</math>  <math>\dot{T}= 1,78^\circ\text{C/s}</math>  <math>G_L= 6,05^\circ\text{C/mm}</math> <math>\lambda_1=</math>  <math>952,34\mu\text{m}</math>  <math>\lambda_3= 78,19\mu\text{m}</math></p>

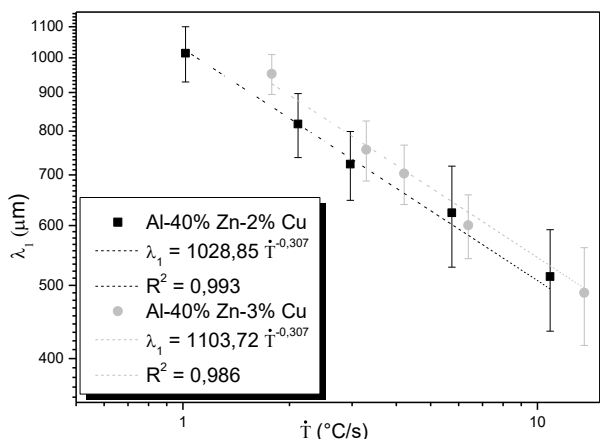


Figura VIII – Correlação entre os valores do espaçamento dendrítico primário ( $\lambda_1$ ) e as taxas de resfriamento.

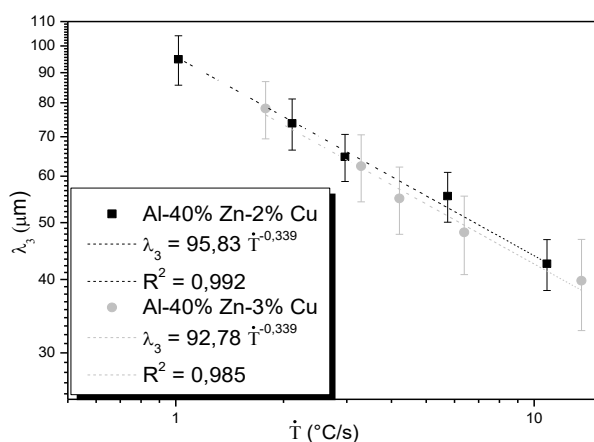


Figura IX - Correlação entre os valores do espaçamento dendrítico terciário ( $\lambda_3$ ) e as taxas de resfriamento.

As Figuras VIII e IX estabelecem as relações entre os espaçamentos dendríticos e o parâmetro térmico taxa de resfriamento ( $\dot{T}$ ). Observou-se uma tendência similar a descrita pela literatura [7,21,22] que mostra que os espaçamentos dendríticos diminuem com o aumento da velocidade de solidificação e da taxa de resfriamento, e esses parâmetros variam de altos valores, nas proximidades do molde, seguindo um perfil decrescente ao longo do lingote nos processos de solidificação unidirecional com a utilização de moldes refrigerados à água. Isso ocorre em decorrência da formação de uma fina camada de metal que se solidifica junto à parede do molde, e, com a formação do espaço físico separando o metal e molde a medida que o processo avança, e com a evolução da camada solidificada no líquido, há um aumento da resistência térmica à passagem do calor em direção ao molde. Vale salientar que o coeficiente de correlação entre os pontos e a curva traçada é superior a 0,9, o que indica que a equação é capaz de descrever o comportamento apresentado pelo material.

As Figuras X e XI exibem a relação entre os valores experimentais dos espaçamentos dendríticos ( $\lambda_1$  e  $\lambda_3$ ) e a velocidade de avanço ou deslocamento da isoterma *liquidus* para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu. É perceptível o perfil decrescente da curva, indicando que as mais altas eficiências na extração

de calor são obtidas em posições mais próximas à chapa-molde, em instantes iniciais da solidificação (sendo assim, observa-se uma tendência de redução dos espaçamentos quando há aumento da velocidade da isoterma). Observa-se também um coeficiente de correlação ( $R^2 > 0.9$ ) entre os pontos e a curva traçada, indicando que as funções obtidas são adequadas para expressar o comportamento dos espaçamentos em função da velocidade.

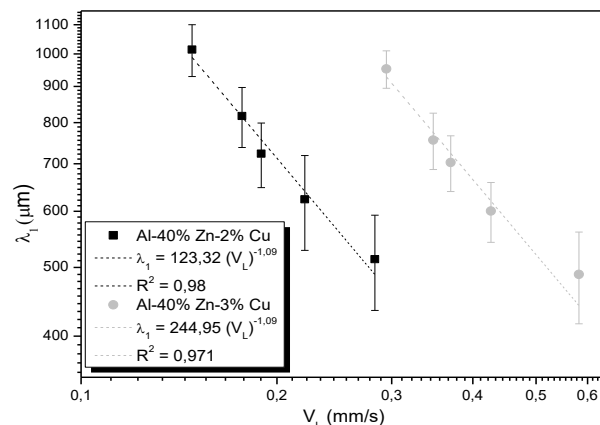


Figura X - Correlação entre os valores do espaçamento dendrítico primário ( $\lambda_1$ ) e as velocidades de avanço isoterma *liquidus*.

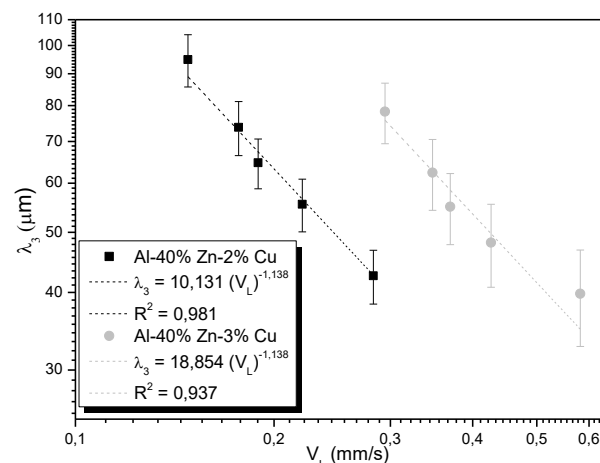


Figura XI - Correlação entre os valores do espaçamento dendrítico terciário ( $\lambda_3$ ) e as velocidades de avanço isoterma *liquidus*.

Percebe-se, pelas figuras mostradas ao longo desse tópico, a possibilidade de obtenção de leis experimentais que caracterizam o crescimento dendrítico, através da relação entre a média dos espaçamentos primários e terciários aferidos e as variáveis térmicas envolvidas no processo de solidificação. Essas leis que regem o comportamento da microestrutura em função das variáveis de solidificação são de extrema importância para a indústria metalúrgica, uma vez que permite a programação das variáveis do processo conforme a microestrutura desejada (o que, por sua vez, tem grande influência nas propriedades apresentadas pelo material).

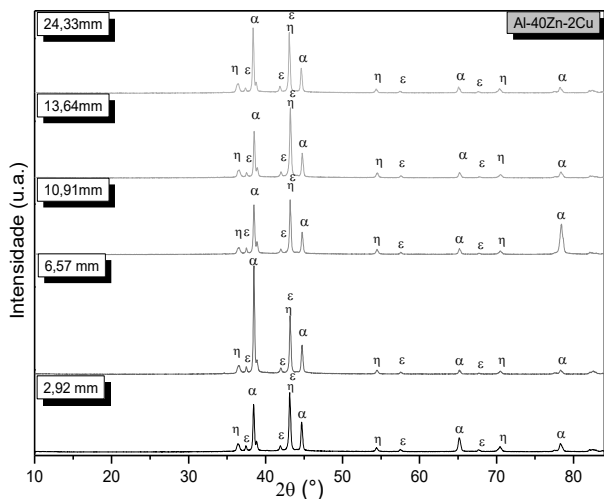


Figura XII - Difratomogramas de raios-x obtidos para a liga Al-40%Zn-2%Cu, solidificada de forma unidirecional vertical ascendente.

**Ensaio de difração de raios-x (DRX)**

As Figuras XII e XIII apresentam os difratogramas de raios-X obtidos para as ligas metálicas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu, respectivamente, que foram realizados objetivando a identificação das fases cristalinas presentes na microestrutura das ligas. Em ambos os gráficos, os picos agudos de alta intensidade correspondem, em sua maioria, aos cristais de  $\alpha$ -Al e  $\eta$ -Zn, enquanto os picos arredondados de baixa intensidade correspondem aos cristais finos de  $\epsilon$  ( $\text{CuZn}_5$ ), normalmente localizados na região de contorno dos grãos, em posições idênticas as observadas na literatura para o trabalho de Shin et al. [27]. Vale salientar ainda a existência de um pico de alta intensidade correspondente as fases  $\eta$  e  $\epsilon$  em cerca de  $43^\circ$  em ambas as ligas, o que provavelmente dificulta a visualização do pico referente a presença das fases  $\theta$  ( $\text{CuAl}_2$ ) e  $\tau'$  ( $\text{Al}_4\text{Cu}_3\text{Zn}$ ) presentes no difratograma da liga Al-40%Zn-3%Cu em cerca de  $44^\circ$ . Por outro lado, não foram identificadas para as amostras de Al-40%Zn-2%Cu o pico correspondente a essas fases, mesmo traçando individualmente os gráficos com os dados obtidos para cada posição, o que pode estar associado com os maiores valores de microdureza apresentadas

pela liga com 3%Cu, uma vez que as fases relacionadas a Cu, sobretudo a fase  $\theta$  ( $\text{CuAl}_2$ ), atua como reforço.

**Caracterização microestrutural por Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)**

As Figuras XIV a XVI apresentam microestruturas das seções transversais das ligas Al-40%Zn-3%Cu e Al-40%Zn-2%Cu permitindo em: a) visualização das dendritas ricas na fase  $\alpha$ -Al circundadas pela fase lamelar  $\alpha+\eta$  e o cobre nas regiões interdendríticas, conforme observado por Shin et al. [27] e, em b) a visualização do mapeamento da composição química, obtida através da espectroscopia de energia dispersiva de raios-x (EDS) acoplado ao MEV, permitindo observar a distribuição de cada elemento na amostra de acordo com sua coloração. Adicionalmente, realizou-se uma análise pontual da composição química, objetivando identificar os elementos químicos presentes em um ponto específico da amostra, permitindo assim a identificação da fase  $\theta$  ( $\text{CuAl}_2$ ) para a liga com adição de 3% Cu, visando complementar os resultados obtidos por DRX.

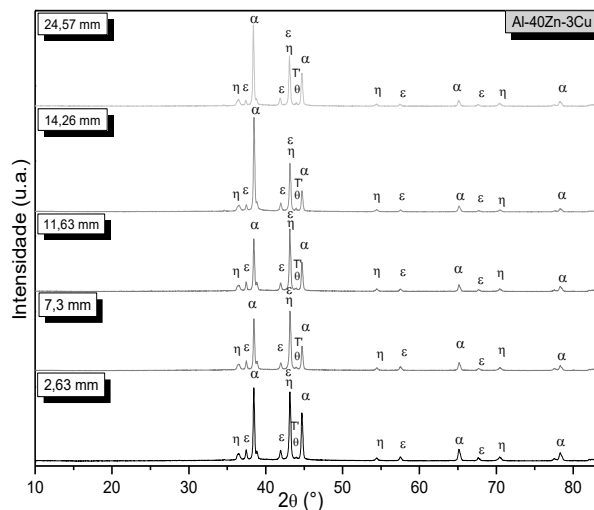


Figura XIII - Difratomogramas de raios-x obtidos para a liga Al-40%Zn-3%Cu, solidificada de forma unidirecional vertical ascendente.



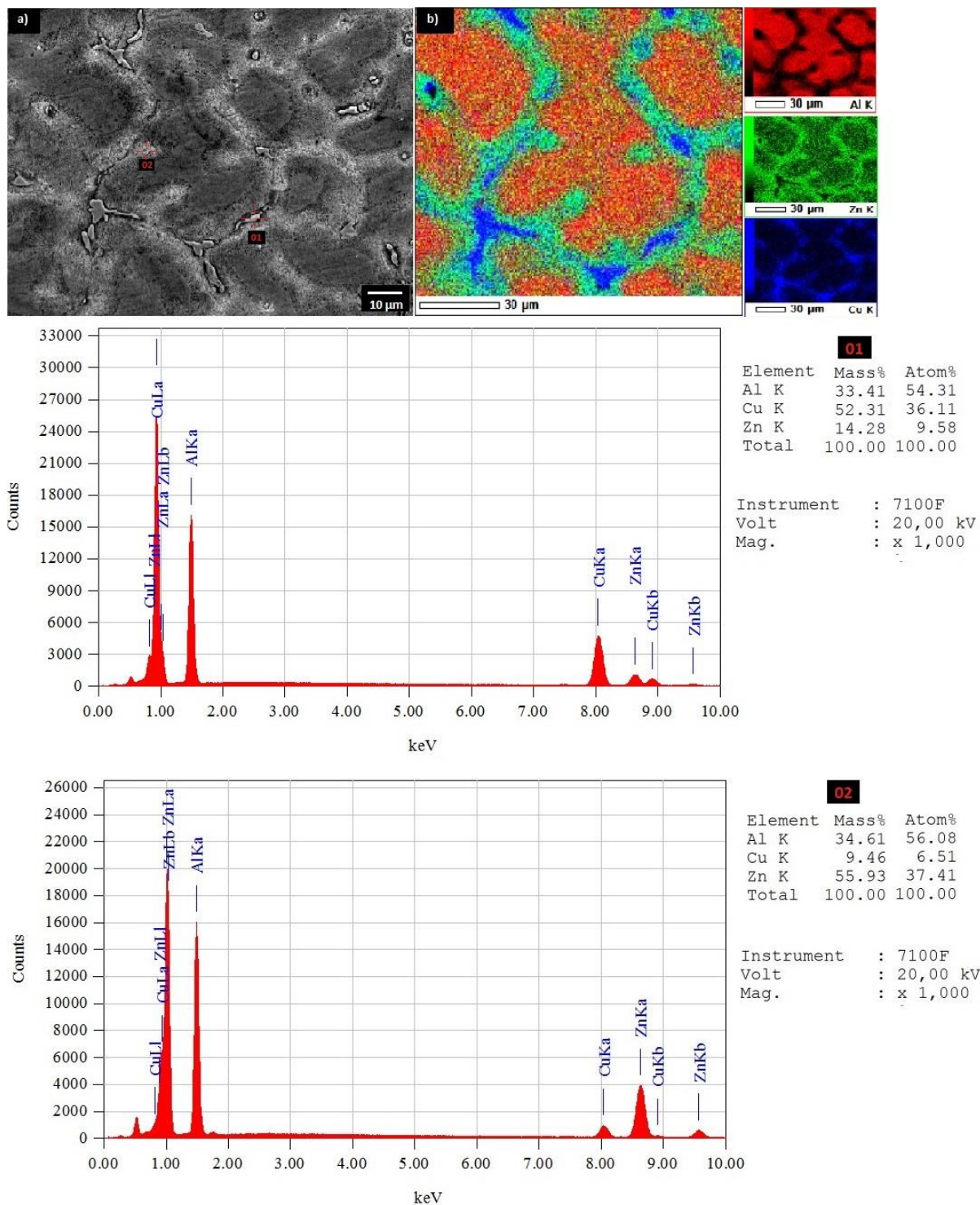


Figura XIV - Análise da composição química dos pontos 01 e 02 correspondentes as fases  $\theta$  ( $\text{CuAl}_2$ ) e  $\tau'$  ( $\text{Al}_4\text{Cu}_3\text{Zn}$ ), respectivamente, na posição 2,63mm da liga Al-40%Zn-3%Cu, utilizando o recurso EDS do MEV com ampliação 1000x.

A análise pontual realizada para a liga Al-40%Zn-3%Cu nas posições correspondentes ao primeiro e último termopares (posições 2,63 e 24,57mm, respectivamente) identificou a presença da fase  $\theta$  em ambas as posições, além da fase  $\tau'$  ( $\text{Al}_4\text{Cu}_3\text{Zn}$ ), com teores bastante próximos aos observados por Shin et al. [27], que, por sua vez, observou para fase  $\theta$  teores de Zn entre 6,2 e 15,3%, teores de Al entre 32,7 e 42,37% e teores de Cu entre 51,42 e 51,96% (% em peso) e para a

fase  $\tau'$  observou teores de Zn entre 42,8 e 58,2%, teores de Al entre 31,2 e 38,6% e teores de Cu entre 3,2 e 26,2%. À título de informação a Figura XVI exibe uma análise pontual realizada para a liga Al-40%Zn-2%Cu, que, por sua vez, exibe a presença da fase  $\varepsilon$  ( $\text{CuZn}_5$ ), que também é observada por Shin et al. [27] apresentando teores de Zn entre 29,1 e 32,1%, teores de Al entre 48,1 e 49,8% e teores de Cu entre 18 e 19,2% (% em peso), sendo esses valores bastante próximos aos encontrados. Vale salientar que não foi identificada para essa liga a

presença da fase  $\theta$  em nenhuma altura correspondente a posição dos termopares, o que corrobora com a ausência desses picos no DRX e, uma vez que esta fase atua como reforço, a ausência da mesma pode acarretar em menores

valores de propriedades mecânicas para essa liga quando comparados com os valores obtidos para a liga com adição de 3%Cu.

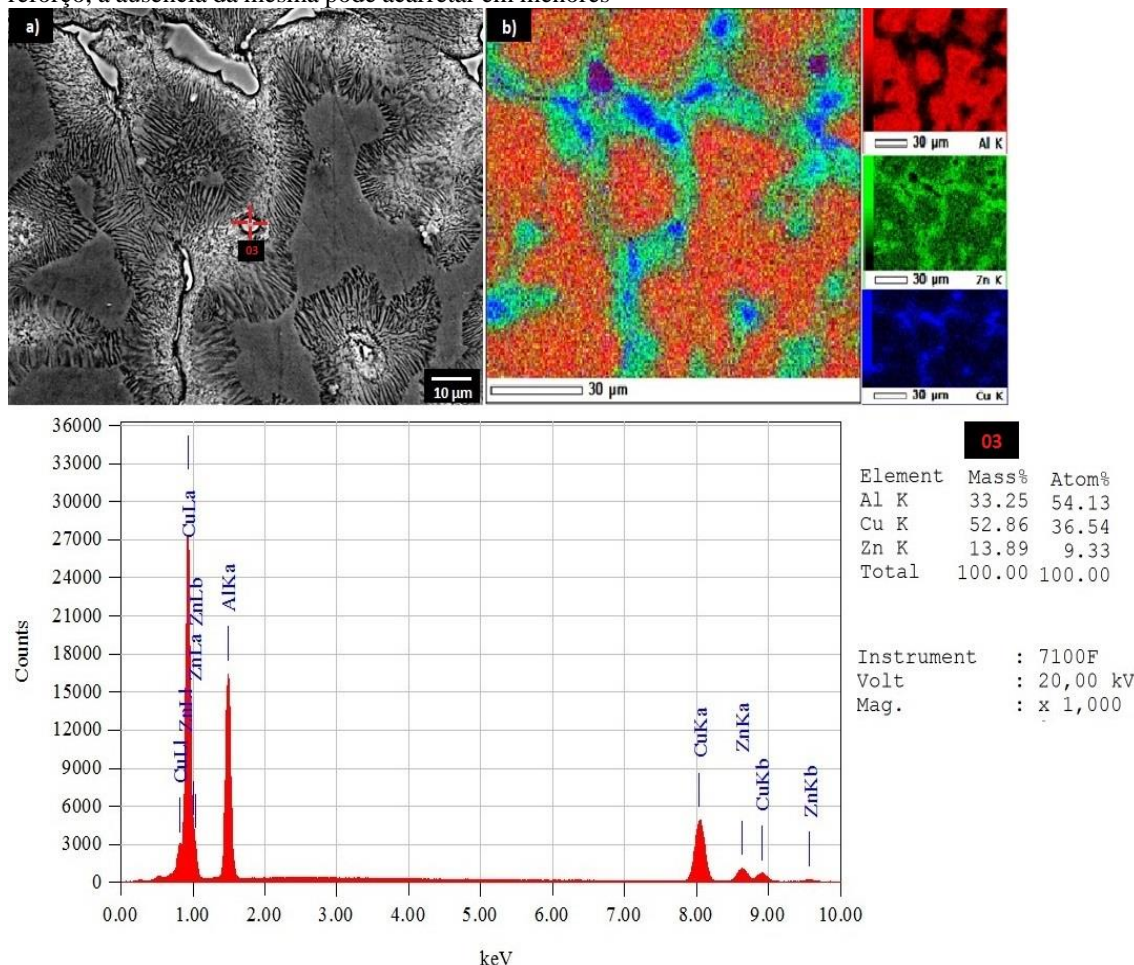


Figura XV - Análise da composição química do ponto 03 correspondentes a presença da fase  $\theta$  ( $\text{CuAl}_2$ ), na posição 24,57mm da liga Al-40%Zn-3%Cu, utilizando o recurso EDS do MEV com ampliação 1000x.

**Ensaio de microdureza vickers**

Os resultados das medições da microdureza Vickers aferidas na região interdendrítica (o que inclui a porção lamelar e as fases ricas em Cu) em função do espaçamento dendrítico primário para as ligas Al-40%Zn-2%Cu e Al-40%Zn-3%Cu estão exibidos na Figura XVII. A mesma exhibe a equação modelo Hall-

Petch ( $HV=H_0+k.\lambda_1^{-1/2}$ ), que expressa a dependência entre microdureza vickers (HV) e os espaçamentos dendríticos primários ao longo do lingote, sendo utilizado o inverso da raiz quadrada de  $\lambda_1$ , e assumindo um comportamento linear, sendo possível determinar os coeficientes  $H_0$  e  $K$  através de regressão linear, ou seja, pelo método dos mínimos quadrados [28].

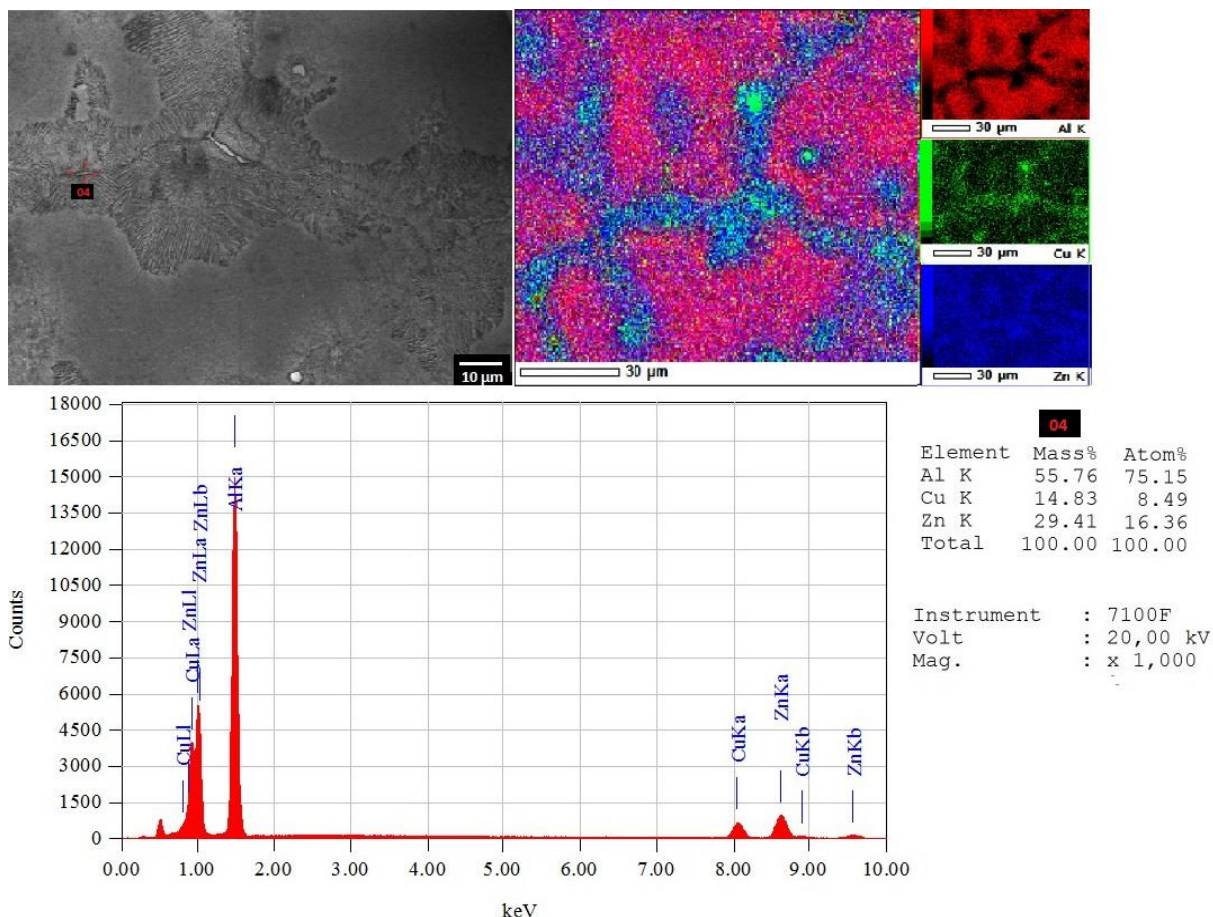


Figura XVI - Análise da composição química do ponto 04 correspondentes a presença da fase ε (CuZn<sub>5</sub>), na posição 6,57mm da liga Al-40%Zn-2%Cu, utilizando o recurso EDS do MEV com ampliação 1000x.

Pode-se observar, ao longo de uma mesma liga, maiores valores de microdureza associados à menores valores de  $\lambda_1$ , o que está de acordo com os trabalhos exibidos na literatura [29-32] que mostram um aumento de dureza em função do refino da microestrutura que decorre das maiores taxas de resfriamento observadas em posições mais próximas da chapa-molde, uma vez que uma estrutura mais refinada implica em uma distribuição mais homogênea das partículas da segunda fase e dos intermetálicos presentes na liga. Além disso, comparando os resultados obtidos para as duas ligas, observa-se valores de microdureza mais elevados para a liga com maior teor de Cu, em decorrência da presença da fase θ (CuAl<sub>2</sub>) (cujas presença é evidenciada no difratograma da liga com 3% Cu e pela análise química pontual efetuada por espectroscopia de energia dispersiva de raios-x (EDS) no MEV, que permite a identificação das fases presentes no material) que atua como um reforço, dificultando a movimentação das discordâncias e promovendo um incremento nessa propriedade mecânica da liga.

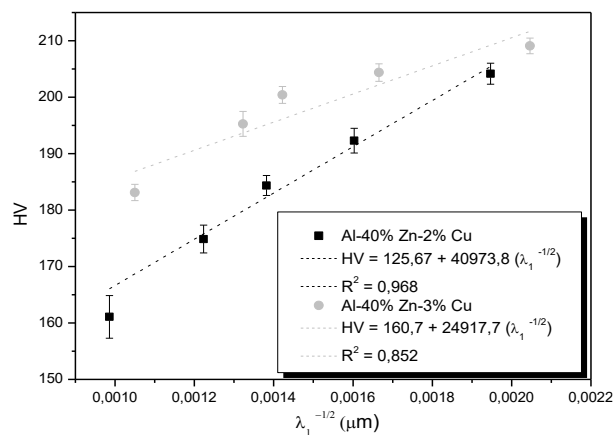


Figura XVII - Evolução dos valores da microdureza aferidos na região lamelar em função do espaçamento dendrítico  $\lambda_1$ .

### Conclusões

Com base nas investigações experimentais conduzidas ao longo desse trabalho, juntamente com a correlação dos trabalhos contidos na literatura relacionados com o assunto, conclui-se que, para as ligas estudadas:

- conforme o esperado, observa-se uma diminuição dos valores obtidos

experimentalmente para VL,  $\dot{T}$  e GL com o avanço da isoterma *liquidus*, ou seja, quanto mais afastado da chapa/molde, menores são os valores desses parâmetros experimentais. Além disso, comparando as duas ligas em estudo, observou-se que a liga com maior teor de cobre apresenta maiores valores de velocidade de deslocamento as isoterma *liquidus* e taxa de resfriamento, o que pode ser atribuído a temperatura de vazamento do material, que foi apenas ligeiramente superior a *liquidus*, o que pode ter implicado na existência de núcleos já no início do processo de solidificação, e, dessa forma, um maior o teor de soluto implicou em uma facilidade na passagem da isoterma ao longo do lingote, acarretando em maiores valores desses parâmetros;

- a caracterização microestrutural de ambas as condições estudadas revelou uma morfologia dendrítica ao longo de todas as posições analisadas e, sob as condições de solidificação transitória examinadas neste trabalho, verificou-se que os espaçamentos dendríticos ( $\lambda_1$  e  $\lambda_3$ ) diminuem com o aumento da velocidade de deslocamento da isoterma *liquidus* e da taxa de resfriamento. Comparando os resultados encontrados para as duas composições nominais das ligas em estudo, observa-se que a variação estudada no teor de soluto não alterou de forma significativa os valores dos espaçamentos, apesar de observar uma tendência de diminuição nos espaçamentos para a liga com o maior teor de soluto;
- o ensaio de DRX corroborou com os resultados apresentados pelo MEV e evidenciou uma maior quantidade de fases associadas ao Cu para a liga Al-40%Zn-3%Cu, sendo estas as fases  $\theta$  (CuAl<sub>2</sub>) e  $\tau'$  (Al<sub>4</sub>Cu<sub>3</sub>Zn) que atuam como reforço a matriz, o que, associado as maiores taxas de resfriamento e velocidade *liquidus* observadas para essa liga, pode justificar os maiores valores de microdureza encontrados para a mesma.

### Referências

- [1] BERGEON, N. et al. Necessity of investigating microstructure formation during directional solidification of transparent alloys in 3D. *Advances in Space Research*, 36 (1), 80–85, 2005.
- [2] COUTINHO, M. M. Correlação entre as propriedades mecânicas e microestruturais da liga Al0,4%Nb em diferentes condições de solidificação [dissertação de mestrado em Integridade de Materiais da Engenharia]. Brasília: Universidade de Brasília; 2018.
- [3] SHAFII, M. B. et al. Using nucleators to control freckles in unidirectional solidification. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 33 (8), 1209–1215, 2009.
- [4] ZHANG, J.; CUI, C.; HAN, M.; CHEN, J.; XU, N.; LIU, L.; FU, H. Microstructure and property of czochralski-grown Si-TaSi<sub>2</sub> eutectic in situ composite for field emission. *Journal of Crystal Growth*, 276, 92–96, 2005.
- [5] ROCHA, O. L.; DIAS FILHO, J. M.; COSTA, T. A.; VASCONCELOS, A. J.; MOREIRA, A. L.; Kikushi, R. Coeficiente de transferência de calor na interface metal/molde e variáveis térmicas na solidificação direcional horizontal da liga Al- 6%Cu. *HOLOS*, 5 (29), 28-39, 2013.
- [6] ROSA, D. M. Estruturas Celulares, Transição Celular / Dendrítica e Estruturas Dendríticas na Solidificação Unidirecional Transitória Estruturas Celulares, Transição Celular/ Dendrítica e Estruturas Dendríticas na Solidificação Unidirecional Transitória [tese de doutorado em Engenharia Mecânica]. Campinas: Universidade Estadual de Campinas; 2007.
- [7] DANTAS, P. P. Caracterização de ligas hipereutéticas da Al-Ni solidificadas unidirecionalmente [dissertação de mestrado em Integridade de Materiais da Engenharia]. Brasília: Universidade de Brasília; 2014.
- [8] ALEMDAĞ, Y.; SAVAŞKAN, T. Effects of silicon content on the mechanical properties and lubricated wear behaviour of Al-40Zn-3Cu-(0-5)Si alloys. *Tribology Letters*, 29 (3), 221–227, 2008.
- [9] ALEMDAĞ, Y.; SAVAŞKAN, T. Mechanical and tribological properties of Al-40Zn-Cu alloys. *Tribology International*, 42 (1), 176–182, 2009.
- [10] ELZANATY, H. The effect of different copper content on microstructure and mechanical properties of Zn – 40Al and Al – 40Zn alloys. *Impact Journals*, 2 (7), 55–62, 2014.
- [11] ILANGOVAN, S.; ARUL, S.; SHANMUGASUNDARAM, A. Effect of Zn and Cu Content on Microstructure, Hardness and Tribological Properties of Cast Al-Zn-Cu Alloys. *International Journal of Engineering Research in Africa*, 27, 1–10, 2016.
- [12] PUND, A. C.; SONAWANE, P. R. Optimization of Wear by Addition of Silicon in Aluminium based alloy for Tribological Applications - A Review. *Ijariie*, 3 (4), 2268–2274, 2017.
- [13] ASM INTERNATIONAL (AMERICAN SOCIETY FOR METALS). *ASM Handbook, Metallography and Microstructures*, volume 9, 2004.
- [14] GÜNDÜZ, M.; ÇADIRLI, E. Directional solidification of aluminium-copper alloys. *Materials Science and Engineering A*, 327 (2), 167–185, 2002.
- [15] McCARTNEY, D.G., HUNT, J.D. Measurements of Cells and Primary Dendrite Arm Spacing in Directionally Solidified Aluminium Alloys. *Acta Metallurgica*, 29, 1851–1863, 1981.
- [16] SÁ, F.A., ROCHA, O.L., SIQUEIRA, C.A.; GARCIA, A. The Effect of Solidification Variables on Tertiary Dendrite Arm Spacing in Unsteady-State Directional Solidification of Sn-Pb and Al-Cu Alloys. *Materials Science and Engineering A*, 373, 131-138, 2004.
- [17] ROSA, D. M.; SPINELLI, J. E.; GARCIA, A. Tertiary dendrite arm spacing during downward transient solidification of Al-Cu and Al-Si alloys. *Materials Letters*, 60 (15), 1871–1874, 2006.
- [18] ASTM INTERNATIONAL: ASTM E384: Standard Test Method for Knoop and Vickers Hardness of Materials. *ASTM Standards*, p. 1–43, 2012.

- [19]FARIA, J.D.; BRITO, C.C. de; COSTA, T.A.P. de S.; VERÍSSIMO, N.C.; SANTOS, W.L.R.; DIAS FILHO, J.M. da S.; GARCIA, A.; CHEUNG, N. Influência na microestrutura e na microdureza decorrente da adição de 4%Ag na liga Al-4%Cu solidificada unidirecionalmente. *Revista Matéria*, 20 (04), 992-1007, 2015.
- [20]KAKITANI, R. Solidificação transitória das ligas Al-11%Si e eutética Al-11%Si-5%Ni: Parâmetros térmicos, microestrutura e propriedades mecânicas [dissertação de mestrado em Engenharia Mecânica]. Campinas: Universidade Estadual de Campinas; 2017.
- [21]GARCIA, A. Solidificação: Fundamentos e aplicações. 2. Ed. São Paulo: Editora da Unicamp; 2011.
- [22]GOULART, P. R. Caracterização da microestrutura de solidificação de ligas Al-Fe e correlação com propriedades mecânicas [tese de doutorado em Engenharia Mecânica]. Campinas: Universidade Estadual de Campinas; 2010.
- [23]SHARP, R. M.; HELLAWELL, A. J. The microscopy and composition of quenched solid-liquid interfaces. *Crystal Growth*, 5, 155-161, 1969.
- [24]SPITTLE, J. A.; LLOYD, D. M. Dendrite arm spacing in hypoeutectic Pb-Sb alloys directionally solidified under steady and non-steady conditions. *Proceedings International Conference on Solidification and Casting*, 15-20, 1979.
- [25]OSÓRIO, W. R.; SANTOS, C. A.; QUARESMA, J. M. V.; GARCIA, A. Mechanical properties as a function of thermal parameters and microstructure of Zn-Al castings. *Journal of Materials Processing Technology*, 143-144, 703-709, 2003.
- [26]GARCIA, A. Influência das variáveis térmicas de solidificação na formação da macroestrutura e da microestrutura e correlação com propriedades decorrentes. *Projeções*, 23, 13-32, 2005.
- [27]SHIN, S. S.; LEE, J. C.; PARK, I. M. Squeeze-cast Al-xZn-3Cu alloys exhibiting high strength, ductility, and wear resistance. *Materials Science and Engineering A*, 690, 177–184, 2017.
- [28]ARMSTRONG, R. W. The influence of polycrystal grain size on several mechanical properties of materials. *Metallurgical and Materials Transactions*, 1 (5), 1169–1176, 1970.
- [29]KAYA, H.; ÇADIRLI, E.; BOYUK, U.; MARASLI, N. Variation of microindentation hardness with solidification and microstructure parameters in the Al based alloys. *Applied Surface Science*, 255, 3071–3078, 2008.
- [30]OLIVEIRA FILHO, R.M. de. Influência dos parâmetros térmicos e espaçamentos dendríticos sobre microdureza [dissertação de mestrado em Engenharia Mecânica]. João Pessoa: Universidade Federal da Paraíba; 2017.
- [31]BÖYÜK, U. Physical and Mechanical Properties of Al–Si–Ni Eutectic Alloy. *Metals and Materials International*, 18 (6), 933-938, 2012.
- [32]LIMA, D.F. de. Análises macro e microestrutural e correlação com a microdureza de ligas Zn-Al solidificadas no processo de squeeze casting [dissertação de mestrado em Integridade de Materiais da Engenharia]. João Pessoa: Universidade de Brasília; 2017.