

04.86.12

CNEA-NT 17/86

PMIM /A-81

3 1986

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
Dependiente de la Presidencia de la Nación
GERENCIA DE DESARROLLO

TRANSFERENCIA DE CALOR Y MASA DURANTE LA SOLIDIFICACION
DE GRANDES LINGOTES

Ing. Eduardo E. VICENTE
Ing. Mario J.A. SOLARI

Buenos Aires
1986

TRANSFERENCIA DE CALOR Y MASA DURANTE LA SOLIDIFICACION DE GRANDES LINGOTES

Eduardo E. VICENTE y Mario J. A. SOLARI

Depto. de Materiales, Comisión Nacional de Energía Atómica
Avda. del Libertador 8250, 1429 Buenos Aires, Argentina

RESUMEN

En este trabajo se presenta una revisión general de los procesos de transferencia de calor y transferencia de soluto a escala macroscópica (macrosegregación) durante la solidificación de grandes lingotes de acero, tales como aquellos utilizados en la fabricación de grandes componentes de los reactores nucleares con recipientes de presión. Se analizan también, algunos problemas que se presentan en las posteriores etapas de elaboración, tales como la forja y soldadura de grandes espesores causados por la segregación de los lingotes.

1. Introducción

La construcción del circuito primario de los reactores nucleares de potencia de uranio natural y agua pesada con recipiente de presión requiere la utilización de grandes componentes de acero. Las exigencias de diseño para las diferentes partes del recipiente de presión, de los generadores de vapor y otros componentes del reactor Atucha II (Kraftwerk Union, 1979) implican la producción de enormes lingotes de acero (hasta 570 Tn), su posterior forjado o laminado y, finalmente, la utilización de procesos de soldadura que incluyen algunos que son no-con-
vencionales para unir grandes espesores (hasta 600 mm). Además, deben

realizarse tratamientos térmicos totales o parciales en las distintas etapas de fabricación.

Algunas de estas operaciones de manufactura están, prácticamente, en el límite de la fabricación con la tecnología actual. Las limitaciones para seguir aumentando el tamaño de los componentes no sólo están relacionadas con la falta de disponibilidad de equipos adecuados (grandes prensas de forja, etc.), sino fundamentalmente dependen de problemas tecnológicos asociados con los fenómenos de transporte de calor y masa que surgen con el cambio de escala. Por ejemplo: los fenómenos de macrosegregación de soluto, que se originan durante la solidificación de grandes lingotes de acero, tienen un marcado efecto perjudicial durante las operaciones de soldadura que se utilizan a continuación de la etapa de forjado.

El estudio de estos problemas requiere un enfoque multidisciplinario. No es posible analizar estos fenómenos sin tener en cuenta los logros de la ciencia de los materiales, en particular la teoría de solidificación de metales. Los trabajos realizados por (Chalmers, 1964) en Harvard y (Flemings, 1974) en el MIT fueron contribuciones fundamentales en la comprensión de los mecanismos básicos de transferencia de calor y masa durante la transformación de fase líquido-sólido. (Biloni, 1968) y asociados (CNEA) realizaron aportes basados en que el conocimiento del mapa de segregación (distribución de soluto de una pieza solidificada) permite conocer la historia térmica del material. Estos avances han permitido establecer una escuela latinoamericana en el campo de la transferencia calórica en el sistema metal-molde orientada a proporcionar las bases para el tratamiento de los problemas tecnológicos existentes (Biloni, 1977). El estado actual de los conocimientos en el área está lo suficientemente desarrollado, no sólo para comprender las dificultades que se producen durante la fabricación de grandes lingotes, sino también para sugerir soluciones adecuadas a los problemas.

El objetivo de este trabajo es analizar algunos aspectos de la fabricación de grandes componentes que están relacionados con la solidificación de grandes lingotes, y presentar una revisión de los procesos de transferencia de calor y transferencia de soluto en escala macroscópica (macrosegregación), mostrándose el grado de aplicación de los conocimientos básicos a la solución de problemas tecnológicos.

2. Defectos en la fabricación de grandes componentes nucleares originados por la macrosegregación de lingotes de acero

En los recipientes de presión para el reactor, generadores de vapor, presurizador, etc. -que se incluyen dentro de los denominados grandes componentes- se utilizan generalmente aceros templados revenidos. Para evitar que, durante el servicio, las superficies de estos aceros ferríticos entren en contacto con el agua normalmente son "plaqueados" por soldadura con aceros austeníticos o Inconel. La tendencia actual en la fabricación de grandes componentes es utilizar una gran proporción de piezas forjadas con el objeto de reducir el número de soldaduras que deben realizarse. Esto implica fabricar lingotes -en algunos casos de más de 500 Tn- para luego forjar piezas del orden de 200 Tn. La fabricación de los lingotes requiere controlar las impurezas, así como lograr una homogénea distribución del soluto minimizando la macrosegregación.

La utilización de las grandes piezas forjadas introduce un nuevo problema durante los diferentes tipos de soldadura, ya sea en la unión con otras piezas como en el plaqueado con acero austenítico. Se ha detectado fisuración inducida por hidrógeno que se produce en la zona afectada por el calor de las soldaduras. Este problema está asociado con las estructuras frágiles del metal base debidas a la macrosegregación del lingote original. El grado de deformación plástica producido durante el forjado de los lingotes no alcanza para destruir la estructura de solidificación. Un análisis metalográfico de estas piezas forjadas muestra subestructuras dendríticas microsegregadas así como regiones macrosegregadas. Estas zonas ricas en C, Mn, Cr y Mo son más frágiles que el resto del material presentando un considerable aumento de la temperatura de transición dúctil-frágil en el ensayo de impacto.

Con el objeto de mostrar el efecto de la macrosegregación en las etapas de soldadura de piezas forjadas se analizará brevemente las principales secuencias de fabricación de una placa tubo para un generador de vapor. Usualmente se fabrica de acero 20MnMoNi55 a partir de la producción de un lingote de 160 Tn de 2000 mm de diámetro del que se obtiene una placa de 3600 mm de diámetro y 1100 de espesor. El lingote posee una distribución heterogénea de soluto en la escala de la pieza como se observa esquemáticamente en la fig. 1. Cuando se elige como dirección de forjado la dirección transversal al eje del lingote se detecta la macro

segregación cerca de la superficie de la placa-tubo que es precisamente donde debe ejecutarse el plaqueado por soldadura con Inconel. Para reducir los problemas de fisuración asociados con el plaqueado y la macrosegregación se elige la alternativa de forja en la dirección axial, utilizándose para plaquear la superficie de la pieza correspondiente a la base del lingote. Este cambio de dirección de forjado minimiza el efecto de la presencia de la macrosegregación pero no permite eliminar el problema (fig. 2). Para evitar que se produzca macrosegregación durante la fabricación del lingote es necesario recurrir al proceso de refusión por electroescoria, alternativa que tiene por el momento limitaciones en cuanto al tamaño máximo del lingote (Mitchell y Smaier, 1979).

Sin embargo, con la ayuda de los conocimientos de solidificación de metales es posible mejorar la homogeneidad de los lingotes colados por métodos clásicos (Flemings, 1976), tal como se discute en la próxima sección. Por otra parte, el conocimiento del mapa de macrosegregación resultante es útil al ingeniero en soldadura para poder prevenir la aparición de fisuras durante los procesos de soldadura. Por razones de costo no es posible obtener una información experimental detallada sobre la homogeneidad de los grandes lingotes, de este modo los modelos de transferencia de calor y soluto resultan una importante herramienta para proveer de esa información.

3. Transferencia de calor durante la solidificación de grandes lingotes

El proceso de extracción calórica durante la solidificación de un lingote comprende la transferencia hacia el medio ambiente del sobrecalentamiento con que el metal es vertido en el molde, más el calor específico y el calor latente. Este fenómeno de transporte se realiza a través de las resistencias térmicas del metal líquido, del metal sólido, de la interfaz metal-molde y de la interfaz molde-atmósfera. En las distintas partes del sistema metal-molde tienen lugar diferentes mecanismos de transferencia calórica: conducción, convección, radiación y transferencia térmica newtoniana (Flemings, 1974) (fig. 3). Todo esto configura un problema matemático y físico complejo, complejidad que aumenta a medida que la geometría se complica, que las propiedades físicas varían con la temperatura y que en lugar de analizarse el avance de una interfaz inestable tal como presentan las aleaciones (Chalmers, 1964)

(Flemings, 1974) (Biloni, 1974).

Para clarificar ideas, es conveniente considerar un lingote idealizado formado por un metal puro que solidifica cubierto por un aislante perfecto en la parte superior. Debido a la contracción durante el cambio de fase el nivel del líquido baja gradualmente "alimentando" la contracción con la consecuente formación de una cavidad o rechupe en la cabeza del lingote solidificado (fig. 4). De no existir tal aislante las pérdidas de calor por radiación y convección del aire provocarían la formación de una corteza sólida y el rechupe sería interno. Si se quisiera obtener un lingote "sano" (sin rechupes ni grietas internas) de 100 Tn de acero sin tomar precauciones en el diseño del alimentador sería necesario colar 136 Tn. Es decir, 27% del material debería descartarse. El rendimiento puede mejorarse notablemente incorporando un material refractario de baja difusividad calórica en la cabeza del lingote. Es frecuente en la práctica industrial el uso de materiales exotérmicos, calefactores eléctricos y, últimamente, del proceso de fundición por electroescoria (Mitchell, 1979) a fin de mantener un adecuado gradiente térmico en la cabeza caliente ("hot top"). Cabe destacar que la función de estas fuentes térmicas no es agregar calor al sistema -dado que de este modo sobrecalentarían el metal líquido originando macrosegregación- sino proveer un más eficiente aislamiento en la cabeza caliente (Flemings, 1976).

El conocimiento del campo térmico $T(\vec{r}, t)$ en el sistema metal-molde, y en particular la evolución del frente de solidificación, permite optimizar el diseño del alimentador mejorando el rendimiento del lingote. Por otra parte, es una información necesaria para efectuar el desmoldeo, para comprender el flujo macroscópico de masa y controlar la macrosegregación resultante. En la fig. 5 puede observarse el perfil térmico durante la solidificación de un metal puro sin sobrecalentamiento del líquido. Debido a las dificultades experimentales inherentes a la obtención de medidas precisas del campo térmico, se debe recurrir al auxilio de modelos de transferencia calórica que permitan calcular la distribución de temperaturas con razonable precisión resolviendo la ecuación de conducción de calor no-estacionaria (Carrlaw y Jaeger, 1959): *

* La simbología se especifica al final del trabajo.

$$\vec{\nabla} \cdot (k \vec{\nabla} T) + c_p \rho \vec{U} \cdot \vec{\nabla} T + q = c_p \rho \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1)$$

en el recinto constituido por el metal líquido, el metal sólido, el molde y el refractario.

El segundo término de la izquierda representa el calor aportado como resultante de un flujo de masa al sistema (tal como en colada continua o en crecimiento de cristales). Dado que el tiempo que demanda la colada convencional (o colada estática) es prácticamente despreciable frente al tiempo total de solidificación este término se anula, lo que equivale a considerar el molde totalmente lleno de metal líquido en el instante inicial.

El tercer término de la izquierda representa la existencia de fuentes o sumideros de calor espacialmente distribuidos en el sistema (tales como generación de calor por efecto Joule en escorias electroconductoras, calentamiento por inducción electromagnética, reacciones químicas exo o endotérmicas etc.). Si suponemos que no hay segregación de soluto (lo cual sólo puede ser considerado para metales idealmente puros o aleaciones muy diluídas) la interfaz sólido-líquido será una superficie que no presentará inestabilidades morfológicas. De esta manera el término q se anula y la liberación de calor latente de la transformación líquido-sólido es tomada en cuenta a través de la condición de borde en la isoterma que tiene la temperatura de fusión del metal. En el caso de aleaciones no diluídas el calor de la solidificación se genera de manera no uniforme en el volumen de la aleación comprendido entre las isotermas "liquidus" y "solidus", llamada zona pastosa o zona "mushy". En esta región el término q se anula. Otra forma muy difundida en la literatura de tratar el calor latente es mediante el uso de un calor específico ajustado en la zona "mushy".

Por último, si consideramos que la conductividad térmica del material no depende de la temperatura la ecuación (1) puede escribirse:

$$a \nabla^2 T = \frac{\partial T}{\partial t} \quad (2)$$

La ecuación diferencial (2), de tipo parabólica, está sujeta a las siguientes condiciones iniciales:

$$T = T_F \quad \text{en el metal} \quad (3)$$

$$T = T_0 \quad \text{en el molde, refractario y atmósfera} \quad (4)$$

Para ello se ha tenido en cuenta que la convección del metal líquido (tanto la convección térmica como el momento convectivo de colada) es lo suficientemente vigorosa como para que el lingote pierda rápidamente su sobrecalentamiento antes que comience el avance del frente de solidificación (Morando y colab., 1970) y que el sobrecalentamiento es despreciable (aproximadamente 20°C en la colada de lingotes de acero)

La ecuación (2) también está sujeta a las condiciones de contorno:

$$k \vec{n} \cdot \vec{\nabla} T = -h \Delta T \quad (5)$$

en las interfaces metal-molde, molde-refractario y molde-atmósfera.

La "piel" sólida que se forma en contacto con las paredes del molde rápidamente adquiere la tenacidad necesaria para resistir la presión hidrostática del metal fundido, alejándose del molde por la contracción e introduciendo una significativa resistencia térmica en la interfaz metal-molde. Luego de completarse la separación del molde, el modo dominante de transferencia calórica es por radiación, con lo cual el coeficiente h correspondiente es fuertemente dependiente de la temperatura (Beckett y Hobson, 1980) (den Hartog y colab., 1975) (Diener y colab., 1972). Considerable atención ha prestado la escuela de Biloni al estudio de la transferencia calórica en la interfaz metal-molde, tanto en los aspectos relacionados con la naturaleza de esta interfaz como con las estructuras de solidificación resultantes (estructura acoquillada o "chill") (Biloni, 1977) (Biloni, 1968) (Prates, 1971) (Morales, 1975) (Prates y Biloni, 1972) (Prates y colab., 1972) (Pires y colab., 1974) (Kiss y Biloni, 1968) (Morales y colab., 1977) (Biloni y Chalmers, 1965).

En las interfaces molde-atmósfera y refractario-atmósfera el enfriamiento se produce por radiación y convección del aire (Hlousek y colab., 1979).

Una condición de borde sumamente importante es:

$$\rho_s H \vec{n} \cdot \vec{R} = -k_s \vec{n} \cdot \vec{\nabla} T \quad (6)$$

en la interfaz sólido-líquido.

Otro dato necesario a fin de poder calcular el tiempo total de la solidificación, tamaño de la cabeza caliente requerida y forma y volumen del rechupe final es la contracción líquido-sólido:

$$\beta = \frac{\rho_S - \rho_L}{\rho_S} \quad (7)$$

donde ρ_S y ρ_L están consideradas a la temperatura de fusión.

Se trata, pues, de un problema no lineal de difusión de calor no estacionario con dominio variable, ya que una de las fronteras (la interfaz sólido-líquido) es una fuente térmica que genera calor latente.

En (Prates, 1971) puede encontrarse una revisión crítica de los diferentes métodos de análisis para encarar este problema, con especial énfasis en las soluciones analíticas exactas y las soluciones analíticas aproximadas.

Por razones de espacio sólo mencionaremos dos soluciones analíticas exactas al problema de conducción de calor no estacionaria con cambio de fase:

- * La más antigua, debida a (Stefan, 1891) quien estudió la solidificación unidireccional de una barra de hielo en contacto con un sumidero perfecto de calor.
- * La solución analítica más general al problema unidireccional (metal y molde semiinfinitos en contacto térmico perfecto), propuesta por (Schwarz, 1933), la cual admite un líquido sobrecalentado.

Merece citarse también la solución analítica aproximada de (Adams, 1958) que permite estimar el tiempo total de solidificación de lingotes cilíndricos con la suposición de que, durante el cambio de fase, la temperatura del sólido en contacto con el molde se mantenga constante.

Los métodos numéricos aportan soluciones específicas, no permitiendo ningún tipo de generalización como en las soluciones analíticas, pero por otra parte, consideran una mayor gama de situaciones físicas reales, tales como resistencia térmica en la interfaz metal-molde no nula, variación de las propiedades físicas con la temperatura, etc. Las técnicas numéricas (Brody y Stoehr, 1980), ejecutadas en computadoras son, muchas veces, la única vía para la solución de complejos problemas de transferencia térmica en diversos procesos de solidificación y soldadura. Los trabajos de (Fisher, 1962) (Servin, 1970) (den Hartog y colab., 1975) (Spencer y colab., 1981) pueden considerarse ejemplos típicos de simulación por computadora del régimen térmico durante la solidificación de lingotes de acero.

Como ejemplo numérico puede considerarse la aplicación de estos métodos de cálculo a la determinación del tiempo total de solidificación de un lingote de acero de 100 Tn de un diámetro de 230 cm y una altura de 340 cm (Flemings, 1976). Utilizándose la solución de Adams para el tiempo de solidificación de cilindros se calcula que se necesitan aproximadamente 14 hs para completar la solidificación. También a través de las soluciones analíticas aproximadas pero considerando algunos refinamientos en la determinación de las condiciones de borde se llega a tiempos del orden de 16 hs. Finalmente con soluciones numéricas y técnicas de computación se obtienen tiempos de aproximadamente 19 hs para el caso descrito por Flemings que se acercan notablemente a los reales.

4. Macrosegregación de grandes lingotes

La solidificación de un lingote real es bastante más compleja que la de un metal puro ya que al flujo de calor se agrega el flujo de masa a través de tres mecanismos:

- * difusión
- * movimiento de cristales
- * convección del líquido

La segregación de soluto que se produce en el frente de la interfaz sólido-líquido que avanza -lo cual constituye el núcleo de la teoría de la solidificación (Chalmers, 1964), (Flemings, 1974), (Biloni, 1974)- unida al transporte de masa por los mecanismos arriba mencionados origina la segregación de soluto a escala de la pieza o lingote (macrosegregación).

La fig. 1 muestra las macrosegregaciones típicas observadas en grandes lingotes de acero:

- * bandeado
- * segregación en "A"
- * segregación en "V"
- * segregación positiva debajo de la cabeza caliente
- * cono de segregación negativa en la base del lingote.

Para comprender estos problemas de segregación consideremos primeramente un lingote que solidifica con estructura columnar dendrítica y cabeza caliente ideal (fig. 6). Habíamos mencionado que las aleaciones

solidifica n sobre un rango de temperaturas (comprendida entre las temperaturas "liquidus" y "solidus" para una aleación de composición dada) llamado rango de solidificación. Debido a la reyección de soluto el líquido interdendrítico se va enriqueciendo paulatinamente en soluto hasta alcanzar la composición eutéctica en la raíz de las dendritas. Como resultado de este proceso el rango de solidificación de la aleación no es ya el predicho por el diagrama de equilibrio sino un rango de solidificación de no-equilibrio comprendido entre la temperatura "liquidus" y la isoterma eutéctica (fig. 7)

La máxima distancia que el soluto reyectado en el frente de solidificación puede moverse a través del líquido por difusión está dada aproximadamente por: $\sim \sqrt{D_L t}$ tomando un coeficiente de difusión en el líquido típico ($D_L = 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{seg}$) y el tiempo total de solidificación del lingote de 100 Tn considerado (19 hs) se obtiene que el soluto puede moverse menos de 1 cm durante el proceso de solidificación. En consecuencia los fenómenos de macrosegregación como los observados en la fig. 1 no pueden explicarse únicamente con el mecanismo de difusión.

Considerable atención ha prestado durante largos años la escuela de Flemings al estudio de la zona pastosa o zona "mushy" (región del lingote comprendida entre las isotermas liquidus y eutéctica). La fig. 8 b y c muestra la temperatura, y composición del líquido interdendrítico en función de la posición en la zona pastosa. Haciendo uso del diagrama de equilibrio es posible calcular la variación de la fracción solidificada (fig. 8 d). Conociendo la temperatura y la composición del líquido interdendrítico es posible calcular su densidad (fig. 8 e). Obsérvese que la fracción solidificada no es lineal con la posición. Se concluye que la liberación de calor latente, que es proporcional al porcentaje de fase transformada, se produce fundamentalmente en la punta de las dendritas y abruptamente en la raíz de las mismas. Esto último debido a que un líquido de composición eutéctica solidifica como un metal puro (Koump y colab., 1967) (Caldwell y colab., 1977).

La comprensión de los fenómenos de transporte que tienen lugar en la zona pastosa han permitido dar explicación a la mayor parte de los fenómenos de macrosegregación observados en la práctica. Los trabajos de (Flemings y Nereo, 1967), (Flemisngs y colab, 1968), (Flemings y Nereo, 1968), (Mehrabian y colab., 1970), (Keane, 1973), (Mc Donald y

Hunt, 1969), (Copley y colab, 1970), (Koump y colab., 1970), (Streat y Weinberg, 1974) atribuyen su origen al lento flujo de líquido interdendrítico rico en soluto (aproximadamente 10^{-5} cm/seg) que tiene lugar debido a la contracción del cambio de fase (4% para aceros) y a la variación de la densidad del líquido con la temperatura en la región líquido-sólido. El trabajo de (Piwonka y Flemings, 1966) ha sido pionero al mostrar que el flujo de líquido en la zona pastosa obedece aproximadamente a las mismas leyes que el flujo a través de otros medios porosos, tales como la arena o un refractario poroso (Scherdegger, 1957), (Collins, 1961). De esta manera es posible aplicar la ley de D'Arcy (la velocidad es proporcional al gradiente de presión) (Mehrabian y colab., 1970 a):

$$\vec{v} = -\frac{K}{\mu f_L} (\vec{\nabla}P + \rho_L \vec{g}) \quad (8)$$

La permeabilidad K es, en rigor, un tensor de segundo orden (Yoshizawa, 1979) que tiene en cuenta la anisotropía del esqueleto dendrítico (una fina malla con espaciados típicos entre ramas dendríticas de 10 a 300μ). Aceptables resultados pueden obtenerse -por analogía con otros medios- considerándola un escalar dependiente del tamaño de los poros y, en consecuencia de la fracción líquida (Piwonka y Flemings, 1966), (Mehrabian y colab, 1970 c), (Apelian y colab., 1974):

$$K = \gamma f_L^2 \quad (9)$$

donde γ es una constante que depende del espaciado de las ramas dendríticas. Para aceros el valor de K varía entre 10^{-6} y 10^{-8} cm² a lo largo de la zona "mushy" (Flemings, 1976).

Durante la solidificación cada elemento diferencial de volumen cambia su densidad debido al flujo de líquido entrante o saliente. La conservación de la masa requiere que:

$$\frac{\partial \bar{\rho}}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot \rho_L f_L \vec{v} \quad (10)$$

donde:

$$\bar{\rho} = f_S \rho_S + f_L \rho_L \quad (11)$$

es la densidad promedio de cada elemento de volumen en el instante t .

Suponiendo que no hay formación de poros:

$$f_s + f_L = 1 \quad (12)$$

las ecuaciones (8) a (11) constituyen las relaciones básicas que describen el flujo de líquido interdendrítico.

Por otra parte (Flemings y Nereo, 1967) generalizaron los modelos de microsegregación de (Brody y Flemings, 1966) y (Bower y colab., 1966) de manera tal que fuera posible contemplar la contracción térmica y la contracción del cambio de fase.

La conservación de soluto en el elemento de volumen diferencial que solidifica requiere que:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\bar{c} \bar{\rho}) = -\vec{\nabla} \cdot \rho_L f_L c_L \vec{v} \quad (13)$$

donde $\bar{c}$ es la composición promedio y luego de algunas manipulaciones (los detalles del cálculo y otras hipótesis del modelo pueden encontrarse en los trabajos originales) se arriba a la expresión:

$$\frac{\partial f_L}{\partial c_L} = - \frac{1-\beta}{1-k_0} \left(1 + \frac{\vec{v} \cdot \vec{\nabla} T}{\frac{\partial T}{\partial t}} \right) \frac{f_L}{c_L} \quad (14)$$

que constituye la "ecuación de redistribución local de soluto" usada para calcular la macrosegregación. La ecuación (14) expresa la variación diferencial en la fracción líquida como función de la variación diferencial de la composición del líquido. (y, en consecuencia, de la temperatura) en cada elemento de volumen y en cada instante de tiempo. Los parámetros β y k_0 , en general, dependen de c_L ; T y $\frac{\partial T}{\partial t}$ son funciones de la temperatura y en consecuencia $\frac{\partial c_L}{\partial t}$ (haciendo uso de la línea "liquidus" del diagrama de equilibrio) y pueden ser calculadas mediante las correspondientes ecuaciones de transferencia calórica (Ridder y colab., 1978). Combinando las ecuaciones que describen el flujo de líquido interdendrítico con la ecuación de redistribución local de soluto se obtiene:

$$\vec{\nabla}^2 P + \left(\frac{2}{f_L} \vec{\nabla} f_L + \frac{1}{\rho_L} \vec{\nabla} \rho_L + \frac{\beta}{1-k_0} \frac{\vec{\nabla} c_L}{c_L} \right) \vec{\nabla} P =$$

$$= - \left(\frac{2}{\rho_L} \dot{v} \rho_L + \frac{2}{f_L} \dot{v} f_L + \frac{\beta}{1-k_0} \frac{\dot{v} c_L}{c_L} \right) \rho_L \vec{g} -$$

$$- \left(\frac{\beta}{(1-k_0) c_L} + \frac{1}{\rho_L} \frac{d\rho_L}{dc_L} \right) \frac{\mu}{\gamma f_L} \vec{R} \cdot \vec{v} c_L \quad (15)$$

Las ecuaciones (8), (9), (14) y (15) relacionan la presión interdendrítica P , la velocidad del líquido interdendrítico $\vec{v}$, la fracción líquida f_L y la composición del líquido c_L , las que deberán ser resueltas en el dominio constituido por la zona pastosa acopladas con la ecuación de flujo calórico no estacionario.

Una vez obtenida la variación exacta de la fracción líquida con la composición del líquido (o la temperatura) es posible calcular la composición promedio del sólido resultante en una dada posición en el lingote a partir de:

$$c_S = \frac{\rho_{S0} \int_{1-f_E}^{1-f_E} c_S df_S + \rho_{SE} f_E c_E}{\rho_S (1-f_E) + \rho_{SE} f_E} \quad (16)$$

Una importante conclusión es que, para que no haya macrosegregación deberá cumplirse la ecuación:

$$\vec{n} \cdot \vec{v} = - \frac{\beta}{1-\beta} \vec{n} \cdot \vec{R} \quad \text{no hay macrosegregación} \quad (17)$$

es decir, la velocidad del líquido interdendrítico debe ser igual al flujo requerido para alimentar la contracción local del cambio de fase.

Cuando el flujo (de regiones calientes a regiones frías) es más rápido que el necesario para alimentar la contracción se produce segregación inversa (negativa):

$$\vec{n} \cdot \vec{v} > - \frac{\beta}{1-\beta} \vec{n} \cdot \vec{R} \quad \text{segregación negativa} \quad (18)$$

Flujos más lentos (de regiones calientes a regiones frías) que la dada por la ecuación (17) causan suave segregación positiva (normal) y cuando el flujo invierte su dirección (de zonas frías a zonas calientes) se produce fuerte segregación positiva:

$$\vec{n} \cdot \vec{v} < - \frac{\beta}{1-\beta} \vec{n} \cdot \vec{R} \quad \text{segregación positiva} \quad (19)$$

La mayor parte del mapa de flujo interdendrítico en los lingotes de las fig. 9 a y b se dirige de regiones calientes a regiones frías. En consecuencia, el flujo puede ser negativo, nulo o levemente positivo. En cambio, en la porción inferior del lingote de la fig. 9 a y en la inferior de la fig. 9 b el flujo se invierte y la segregación será fuertemente positiva.

Un fenómeno interesante ocurre cuando la componente de la velocidad del fluido interdendrítico en la dirección de crecimiento supera la velocidad de avance de las isoterma; es decir, cuando se cumple la condición:

$$\vec{n} \cdot \vec{v} > \vec{n} \cdot \vec{R} \quad (20)$$

la inecuación (20) puede expresarse, también, en la forma:

$$\frac{\vec{v} \cdot \vec{\nabla} T}{\frac{\partial T}{\partial t}} < -1 \quad (21)$$

Cuando esto sucede cada pequeño elemento de metal líquido se va encontrando en regiones cada vez más calientes cuando fluye. La integración de la ecuación de redistribución local de soluto (14) con la condición (21) conduce, no a la solidificación, sino a la refusión de las ramas dendríticas (se incrementa la fracción líquida f_L con el aumento de composición del líquido c_L). Si una determinada región se refunde levemente más que otra la resistencia al flujo en esa zona decrece, aumenta el flujo y, consecuentemente, se profundiza aún más la disolución del esqueleto dendrítico.

Este tipo de inestabilidad en el flujo origina canales en la zona pastosa fuertemente segregados (en forma de lápices) y orientados en la dirección de las líneas de corriente del líquido. Es el mecanismo básico de formación de la segregación en "A" en grandes lingotes y de las segregaciones conocidas como "freckles" en otros procesos de fundición (Mc Donald y Hunt, 1969), (Copley y colab., 1970), (Ridder y colab., 1978), (Kou y colab., 1978), (Giamer y Kear, 1970), (Suzuki y Mishamoto 1978 y 1980).

Una vez que los canales se forman se hace difícil describir cuantitativamente el flujo ya que los cálculos basados en el modelo de fina malla porosa dejan de tener validez. (Asai y Muchi, 1978) han llevado a cabo un análisis teórico de la transferencia de calor, de masa y de momento en la zona "mushy" y propusieron un modelo matemático basado en la teoría de perturbaciones que describe cuantitativamente la inestabilidad del sistema que conduce a las segregaciones tipo canal.

Con respecto a este tipo de segregación conocido como "bandeado" -que son abruptas variaciones en la composición químicas tanto positivas como negativas- aún no han aparecido estudios concluyentes para explicar el mecanismo que le da origen. Es conocido, a través de experimentos de solidificación unidireccional controlada que un aumento (o disminución) súbito en la velocidad de avance de la interfaz sólido-líquido plana provoca una banda rica (o pobre) en soluto (Flemings, 1974). Sobre esta base se ha propuesto que el bandeado es causado por variaciones en la velocidad de avance de las isoterms por influencia de las corrientes convectivas del metal líquido o por la formación irregular del "gap" de aire en la interfaz metal-molde (Becketty Hobson, 1980). También podría atribuirse al efecto de "barrido" del soluto interdendrítico por el movimiento convectivo del líquido no interdendrítico ("bulk" liquid) muy vigoroso durante los primeros estadios de la solidificación del lingote (Flemings, 1976) (Takahashi y colab., 1976).

Supongamos ahora que el lingote solidifica con estructura equiaxial dendrítica y cabeza caliente ideal (fig. 10). Debido a que los cristales sólidos que se forman en el seno del metal líquido son más densos y más pobres en soluto (ver diagrama de fase de la fig. 7) decantan y probablemente "barran" inclusiones hacia el fondo del lingote con la consecuente formación de región de segregación negativa y rica en inclusiones.

Pero también ha sido encontrado segregación negativa en la base de lingotes de estructura completamente columnar. Para esta circunstancia (Mehrabian y Flemings, 1969) proponen el mismo mecanismo básico de flujo de líquido interdendrítico que satisface la inecuación (18) tal como en la base del lingote de la fig. 9 b.

El estado de la solidificación en el cual los cristales equiaxiales que se forman en el seno del metal líquido (cualquiera sea el mecanismo que le diera origen) y son libres de moverse o decantar como un fluido

viscoso ("slurry") ha sido denominado alimentación en masa ("mass feeding") (Flemings, 1976) (fig. 11 a).

La densidad promedio $\bar{\rho}$ de este fluido viscoso cuasi-líquido está dada por la ecuación (11). Una pequeña fracción de sólido formada incrementa significativamente el valor de $\bar{\rho}$. La parte de la zona pastosa formada por cristales dendríticos (columnares o equiaxiales) que están fijos a la porción periférica del lingote enteramente solidificada constituye la región cuasi-sólida (fig. 11 b). Aquí la densidad del fluido es la del líquido interdendrítico rico en soluto. Aún cuando el líquido interdendrítico incrementa su densidad con la disminución de la temperatura siempre será menor que la densidad promedio del fluido cuasi-sólido (fig. 11 b), estableciéndose un mapa convectivo como el mostrado en la fig. 11 c. Este mapa es muy semejante al de la fig. 9 b en el cual el líquido interdendrítico decrece su densidad durante la solidificación en un lingote con estructura columnar dendrítica. Ello explicaría la aparición de segregación en "A" aún en el caso en que líquido interdendrítico aumenta su densidad durante la solidificación.

La segregación positiva en "V" se produce en los últimos estadios de la solidificación del lingote, cuando la fracción solidificada de la zona equiaxial central alcanza valores de 0,2 a 0,4. Se forma una malla cuasi-sólida pero no lo suficientemente resistente como para soportar las enormes presiones a las que está sometida al producirse la contracción líquido-sólido. Aparecen fisuras en forma de "V" según los esfuerzos de corte que se van llenando de líquido interdendrítico rico en soluto (fig. 12).

La segregación positiva debajo de la cabeza caliente es causada por el flujo interdendrítico que desciende desde el alimentador o cabeza caliente llenando la contracción líquido sólido (fig. 13) y también por el flujo convectivo ascendente tal como en las figs. 9 b y 11 c.

La creciente utilización de grandes lingotes ha llevado a la necesidad de tratar de controlar estos tipos de heterogeneidades químicas. De la aplicación de la teoría de la solidificación surge que para reducir la macrosegregación es necesario (1) eliminar la formación y decantado de granos equiaxiales desde la cabeza del lingote, (2) promover un gradiente térmico positivo en el lingote y cabeza. Ha sido propuesta la rotación de los lingotes (fig. 14) durante la solidificación con el objeto de producir una aceleración radial comparable a la gravedad que

que contrarreste el efecto gravitacional tanto sobre el líquido interdendrítico como sobre los cristales equiaxiales que flotan en el metal líquido (Flemings, 1976). Esta acción junto con un correcto diseño de la cabeza caliente pueden colaborar para minimizar la macrosegregación.

5. Conclusiones

- 1- Del análisis de algunos aspectos relacionados con la fabricación de grandes componentes para la industria nuclear surge que la macrosegregación de soluto asociada con los grandes lingotes de acero tiene un marcado efecto perjudicial durante las operaciones de soldadura posteriores al forjado.
- 2- La macrosegregación de soluto se origina por un control incompleto del flujo de calor y del movimiento de sólido y líquido durante la solidificación de los grandes lingotes.
- 3- Los mecanismos principales responsables de la macrosegregación son: 1º flujo de líquido interdendrítico,
2º movimiento de granos equiaxiales.
- 4- El conocimiento de la transferencia de calor y masa durante la solidificación está lo suficientemente desarrollado como para predecir y controlar la mayor parte de los defectos que aparecen durante la fabricación de grandes lingotes de acero.
- 5- Debido al alto costo asociado con la obtención de datos experimentales a partir de lingotes de grandes dimensiones y a la gran cantidad de parámetros físicos involucrados, resulta imprescindible la aplicación de modelos computacionales para el estudio de los fenómenos de transporte.
- 6- Un modelado exitoso sólo puede ser posible sobre las bases firmes que proporcionan la moderna teoría de la solidificación y, desde luego, la práctica industrial.

Agradecimientos

Al proyecto de Tecnología de la Soldadura SUBCYT-CNEA por el apoyo recibido.

Simbología

a	difusividad térmica del material ($= k/c_p \rho$) (m^2/seg)
b	difusividad calórica del material ($= \sqrt{kc_p \rho}$) ($J/m^2 seg^{1/2} K$)
c_p	calor específico del material a presión constante ($J/Kg K$)
c_L	composición del líquido
c_S	composición del sólido
c_E	composición eutéctica
$\bar{c}$	composición promedio de un elemento de volumen de la zona pastosa
$\bar{c}_S$	composición promedio de un elemento de volumen del sólido
D_L	coeficiente de difusión del soluto en el líquido (m^2/seg)
f_L	fracción líquida
f_S	fracción sólida
f_E	fracción eutéctica
$\vec{g}$	aceleración de la gravedad ($9,81 m/seg^2$)
h	coeficiente de transferencia calórica en la interfaz ($J/seg m^2 K$)
H	calor latente de solidificación (J/Kg)
K	permeabilidad del medio poroso (m^2)
k_L	conductividad térmica del líquido ($J/m seg K$)
k_S	conductividad térmica del sólido ($J/m seg K$)
k_o	coeficiente de partición de la aleación ($= c_S/c_L$)
$\vec{n}$	vector unitario perpendicular a las isoterms (m)
P	presión (Nt/m^2)
q	fuentes o sumideros de calor en un elemento de volumen del material ($J/m^3 seg$)
$\vec{r}$	vector posición de un elemento de volumen del material (m)
$\vec{R}$	velocidad de avance de la interfaz sólido-líquido (m/seg)
t	tiempo (seg)
T	temperatura (K)
T_F	temperatura de fusión del metal (K)
T_L	temperatura "liquidus" de la aleación (K)
T_S	temperatura "solidus" de la aleación (K)
T_E	temperatura eutéctica de la aleación (K)
T_o	temperatura ambiente (K)
$\vec{U}$	velocidad lineal del flujo de masa entrante o saliente del sistema (m/seg)
$\vec{v}$	velocidad del líquido interdendrítico (m/seg)

Δ	operador delta
$\vec{\nabla}$	operador nabla
$\vec{\nabla}^2$	operador nabla cuadrado (laplaciano)
β	contracción de la solidificación $(\{\rho_S - \rho_L\} / \rho_S)$
ρ	densidad del material (Kg/m ³)
$\bar{\rho}$	densidad promedio de un elemento de volumen de la zona pastosa (Kg/m ³)
ρ_L	densidad del líquido (Kg/m ³)
ρ_S	densidad del sólido (Kg/m ³)
ρ_{SE}	densidad del sólido de composición eutéctica (Kg/m ³)
γ	constante de la ecuación de D'Arcy (m ²)
μ	viscosidad del líquido interdendrítico (Kg/m seg)

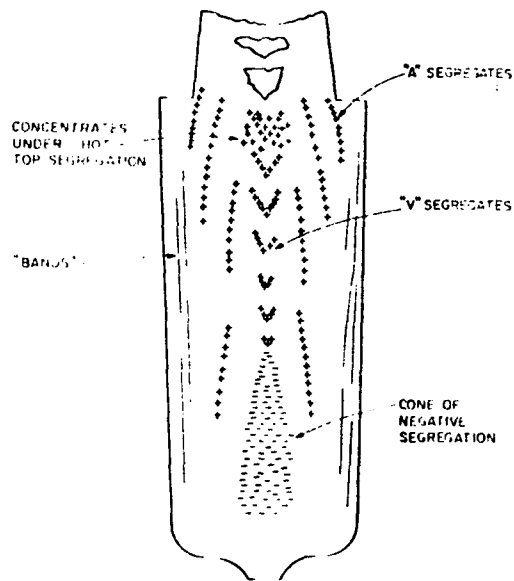


fig. 1

Block: 150 ÷ 160 t

Schmiedeteil

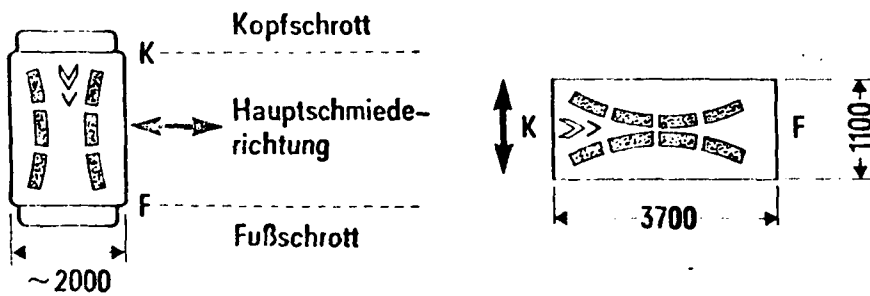


fig. 2

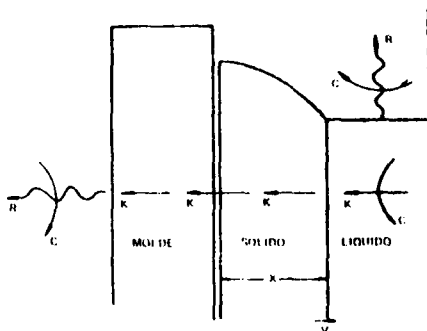


fig. 3

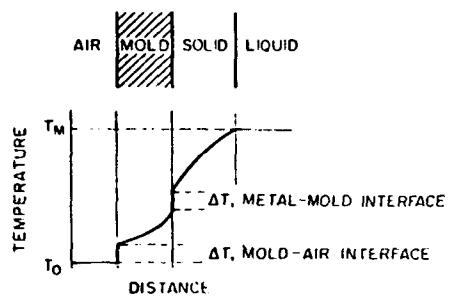


fig. 5

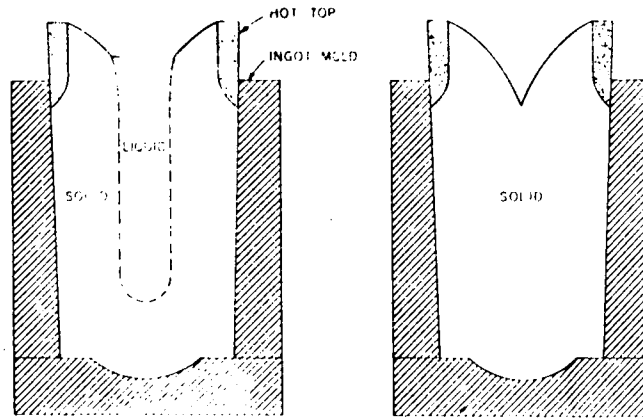


fig. 4

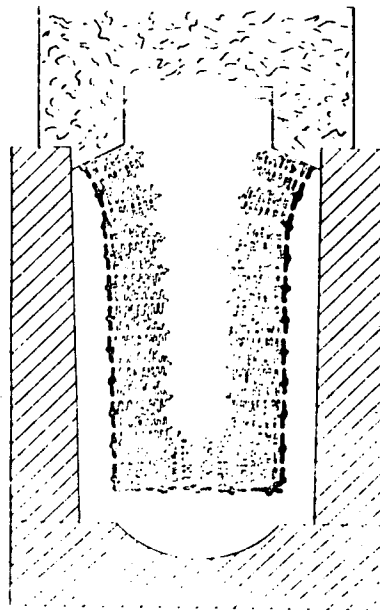


fig. 6

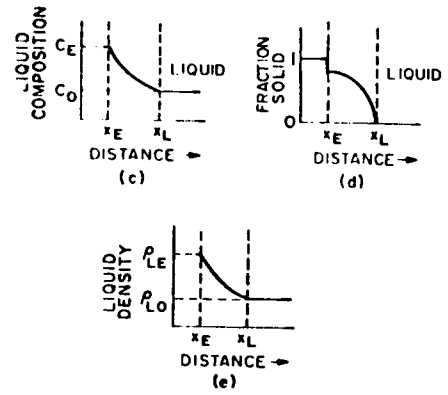
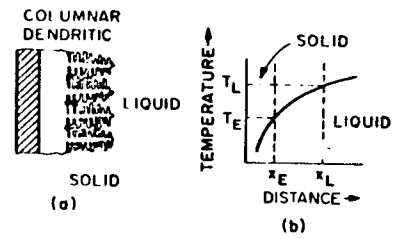


fig. 8

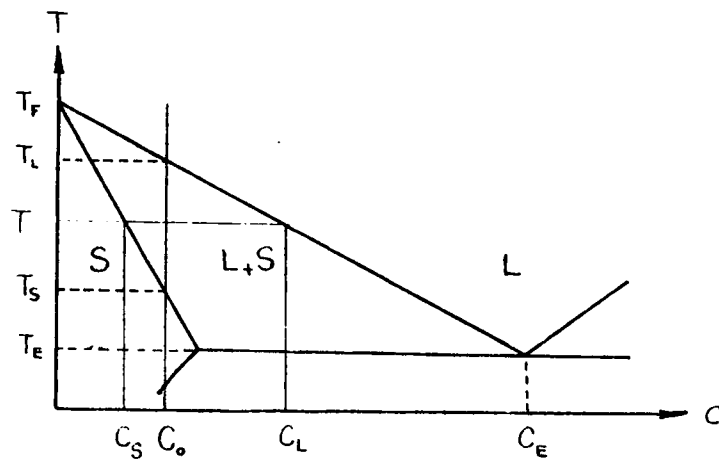


fig. 7

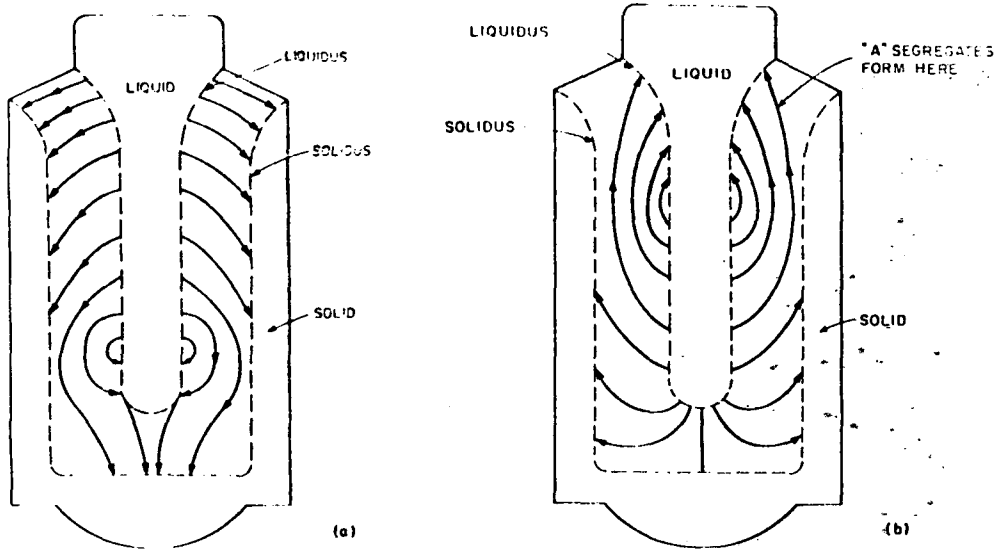


fig. 9

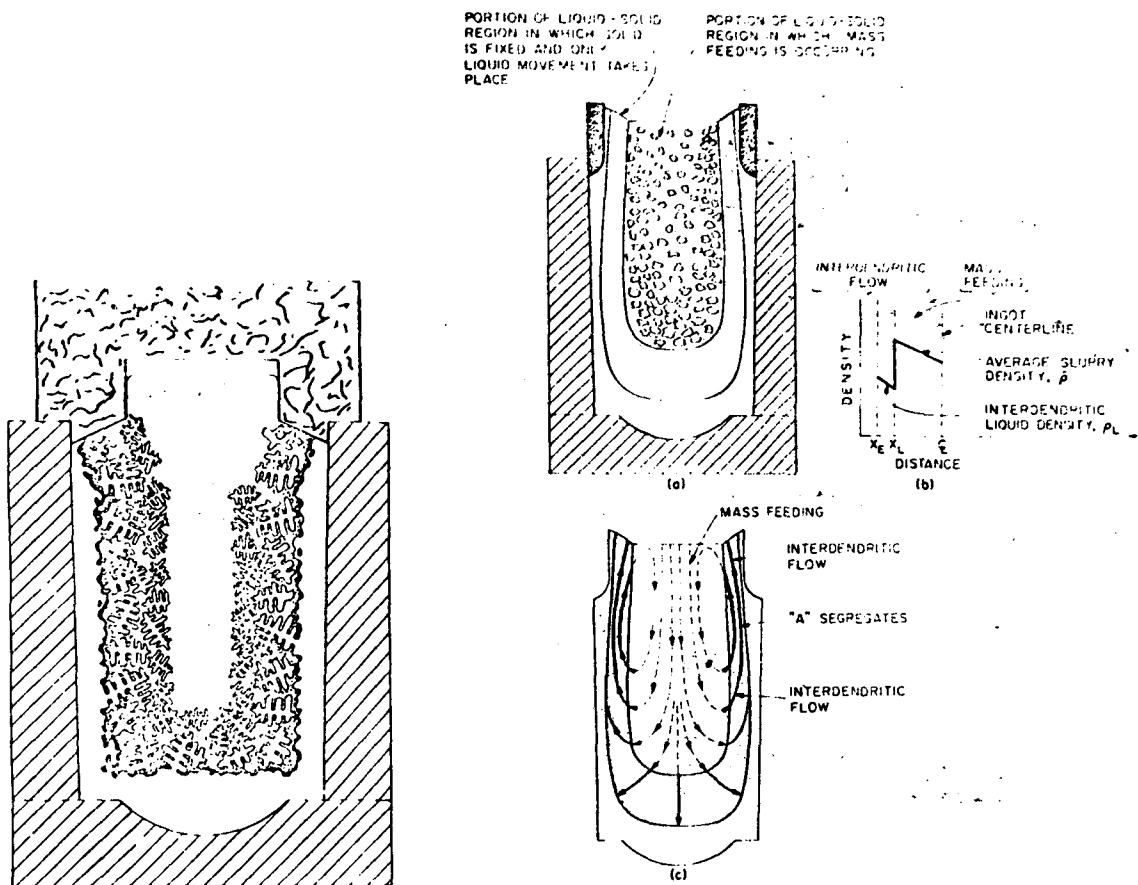


fig. 10

fig. 11

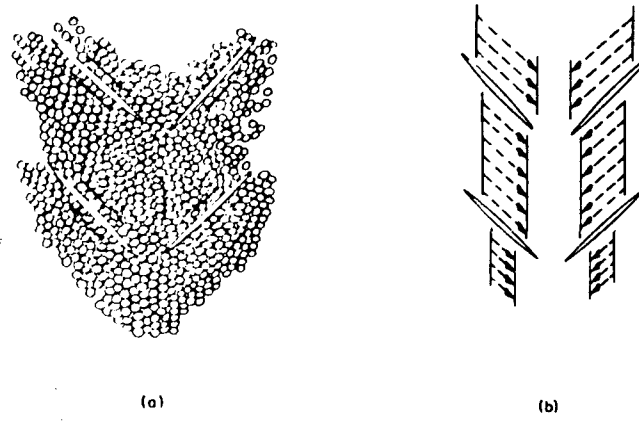


fig. 12

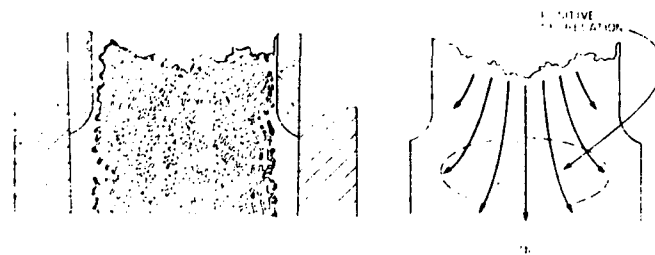


fig. 13

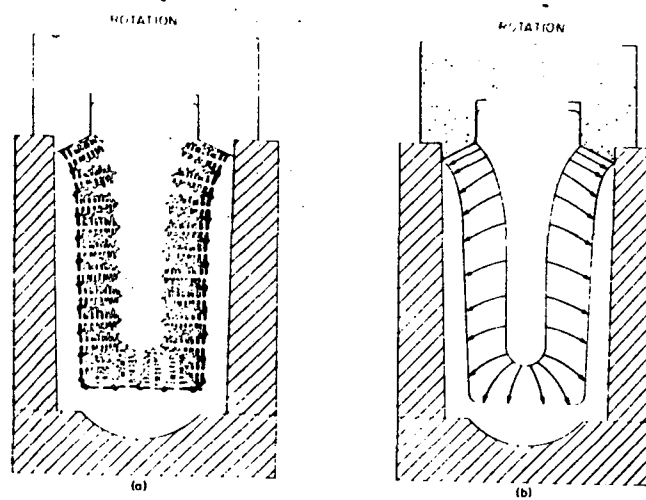


fig. 14

Referencias

Adams, C. M. Jr.: "Thermal considerations in freezing", in "Liquid metals and solidification", ASM Seminar Proc., Cleveland, (1958), 187-217.

Apelian, D.- Flemings, M. C. and Mehrabian, R.: "Specific permeability of partially solidified dendritic networks of Al-Si alloys", Metall. Trans., 5, (1974), 2533-2537.

Asai, S. and Muchi, I.: "Theoretical analysis and model experiments on the formation mechanism of channel-type segregation", Trans. ISIJ, 18, (1978), 90-98.

Biloni, H.: "Relationships between segregation substructures and casting structures", Solidification, ISI, (1968), 110.

Biloni, H.: "Redistribución de soluto durante la solidificación", PMM/R-136, (1974).

Biloni, H.: "Transferencia calórica en el sistema metal-molde: su influencia sobre la estructura y propiedades de metales y aleaciones", Ciencia Interamericana, Vol. 18, Nos. 3 y 4, (1977), 3-13.

Biloni, H. and Chalmers, B.: "Predendritic solidification", Trans. TMS-AIME, 233, (1965), 373-379.

Beckett, P. M. and Hobson, N.: "The effect of shrinkage on the rate of solidification of a cylindrical ingot", Int. J. Heat Mass Transfer, 23, (1980), 433-436.

Bower, T. F.- Brody, H. D. and Flemings, M. C.: "Measurements of solute redistribution in dendritic solidification", Trans. TMS-AIME, 236, (1966), 624-634.

Brody, H. D. and Flemings, M. C.: "Solute redistribution in dendritic solidification", Trans. TMS-AIME, 236, (1966), 615-623.

Brody, H. D. and Stoehr, R. A.: "Computer simulation of heat flow in casting", J. of Metals, Vol 32, N°9, (1980), 20-27.

Caldwell, T. W.- Campagna, A. J.- Flemings, N. C. and Mehrabian, R.: "Refinement of dendrite arm spacings in Aluminum ingots through heat flow control", Metall. Trans., 8B, (1977), 261-270.

Carslaw, H. S. and Jaeger, J. C.: "Conduction of heat in solids", 2nd ed., Oxford University Press, London, (1959).

Cerjak, H.- Schmidt, J.- Breckwolddt, E. und Papouschek, F.: "Beitrag zur untersuchung des bruchverhaltens geseigerter gefugebereiche des stahles 20MnMoNi55", 6. MPA-Seminar: "Sicherheit der druckfuhrenden UmschlieBung von LWR" am 09/10.10.80, Kraftwerk Union, (1980).

Collins, R. E.: "Flow of fluid through porous materials", Reinhold Publishing Co., (1961).

Copley, S. M.- Giamei, A. F.- Johnson, S. M. and Hornbecker, M. F.: "The origin of freckles in unidirectionally solidified castings", Metall. Trans., 1, (1970), 2193-2204.

Chalmers, B.: "Principles of solidification", John Wiley and Sons, Inc., New York, (1964).

den Hartog, H. W.- Rabenberg, J. M. and Willemse, J.: "Application of a mathematical model in the study of the ingot solidification process", Ironmaking and Steelmaking, 2, (1975), 134-144.

Diener, A.- Drastik, A. und Haumann, W.: Untersuchungen uber den Warmeubergang zwischen Block und Kokille beim Erstarren von Stahl", Arch. Eisenhuttenwes., 43, (1972), 525-533.

Fisher, G. A.: "Solidification and soundness prediction for large steel ingots", ASTM Proc., 62, (1962), 1137-1153.

Flemings, M. C.: "Solification processing", Mc Graw-Hill Book Co., New York, (1974).

Flemings, M. C.: "Principles of control of soundness and homogeneity of large ingots", Scand. J. Metallurgy, 5, (1976), 1-15.

Flemings, M. C. and Nereo, G. E.: "Macrosegregation: Part I", Trans. TMS-AIME, 239, (1967), 1449-1461.

Flemings, M. C. and Nereo, G.E.: "Macrosegregation: Part III". Trans. TMS-AIME, 242, (1968), 50-55.

Flemings, M. C.- Mehrabian, R. and Nereo, G. E.: "Macrosegregation: Part II", Trans. TMS-AIME, 242, (1968), 41-49.

Giamei, A. F. and Kear, B. H.: "On the nature of freckles in Nickel base superalloys", Metall. Trans. 1, (1970), 2185-2192.

Gould, G. C.: "Freckle segregation in vacuum consumable-electrode ingots", Trans. TMS-AIME, 233, (1965), 1345-1351.

Hlousek, J.- Enenkl, V.- Kavicka, F. and Velicka, B.: "Thermal radiation influences during ingot-mould casting processes", Ironmaking and Steelmaking, 1, (1979), 38-43.

Keane, M. A.: "Control of interdendritic fluid flow and macrosegregation", Sc. D. Thesis, MIT, (1973).

Kiss, F. J. and Biloni, H.: "Effect of the pressure upon the unidirectional solidification of Aluminum with zero superheat and cooled molds", Z. Metallkunde, 66, (1975), 755-758.

Kou, S.-Poirier, D. R. and Flemings, M. C.: "Macrosegregation in rotated remelted ingots", Metall. Trans., 9B, (1978), 711-719.

Koump, V.- Tien, R, H. and Kim, W. J.: "Growth of the solid-liquid region during one-dimensional solidification of binary alloys. Part I, Trans. TMS-AIME, 239, (1967), 1305-1312.

Kraftwerk Union: "Nuclear power plant with pressurized heavy water reactor", november, (1979).

Mc Donald, R. J. and Hunt, J. D.: "Fluid motion through the partially solid regions of a casting and its importance in understanding "A" type segregation", Trans. TMS-AIME, 245, (1969), 1993-1997.

Mehrabian, R.- Keane, M. A. and Flemings, M. C.: "Interdendritic fluid flow and macrosegregation: influence of gravity", Metall. Trans., 1, (1970), 1209-1220.

Mehrabian, R.- Keane, M.A. and Flemings, M.C.: "Experiments on macrosegregation and freckle formation", Metall. Trans., 1, (1970), 3238-3241.

Mitchell, A.: "Electroslag hot-topping of heavy ingots", Ironmaking and Steelmaking, 6, (1979), 32-37.

Mitchell, A. and Smailer, R. M.: "Practical aspects of electroslag remelting technology", Int. Met. Rev., N°5 and 6, (1979), 231-264.

Morales, A.: "Efecto de la naturaleza de la superficie del molde sobre la transferencia calórica en el sistema metal-molde y las estructuras resultantes", Tesis U.N. Rosario, PMM/T-187, (1975).

Morales, A.- Glicksman, M. and Biloni, H.: "Effect of mold microgeometry on casting structure", Proc. of the Sheffield Int. Conf. on Solidification and Casting, (1977)

Morando R. and Biloni, H.: "On the nature of chill zone in ingot solidification", Trans. TMS-AIME, 242; (1968), 1121-1125.

Morando, R.- Biloni, H.- Cole, G.S. and Bolling, G.F.: "The development of macrostructure in ingots of increasing size", Metall. Trans., 1, (1970), 1407-1412.

Pires, O. S.- Prates, M. and Biloni, H.: "Unidirectional solidification of metals with zero superheat. Case of cooled molds", Z. Metallkunde,

65, (1974), 143-149.

Piwonka, T. S. and Flemings, M. C.: "Pore formation in solidification", Trans. TMS-AIME, 236, (1966), 1157-1165.

Prates, M.: "Influencia de la capacidad de extracción calórica del sistema metal-molde sobre el proceso de solidificación", Tesis U.N. Sur, PMM/T-78, (1971).

Prates, M.- Fissolo, J. and Biloni, H.: "Heat flow parameters affecting the unidirectional solidification of pure metals", Metall. Trans., 3, (1972), 1419-1425.

Prates, M. and Biloni, H.: "Variables affecting the nature of the chill zone", Metall. Trans., 3, (1972), 1501-1510.

Ridder, S. D.- Reyes, F. C.- Chakravorty, S.- Mehrabian, R.- Nauman, J. D.- Chen, J. H. and Klein, H. J.: "Stady state segregation and heat flow in ESR", Metall. Trans., 9B, (1978), 415-425.

Scherdegger, A. E.: "The Physics of flow through porous media", University of Toronto Press, (1957).

Schwarz, C.: "Mathematics of solidification processes in the casting of metals", Z. Angew. Math. Mech., 13, (1933), 202.

Servin, R.: "Mathematical study of the thermal evolution of steel ingots", Proc. of the Conf. on "Mathematical models in metallurgical process development", ISI, London, (1970), 147-157.

Spencer, S.- Carless, P. and Magee, E.: "Mathematical model for simulation of solidification and cooling of cast rolls", Ironmaking and Steel making, 8, (1981), 129-136.

Stefan, J.: Ann. Phys. Chem., 42, (1891), 269, cit. Carslaw and Jaeger.

Stewart, M. J. and Weinberg, F.: "Fluid flow through a solid-liquid dendritic interface", Metall. Trans., 3, (1972), 333-337.