

# DESCRIÇÃO MICROESTRUTURAL E EFEITO DA LOCALIZAÇÃO DOS NÚCLEOS DURANTE A RECRISTALIZAÇÃO PELO MÉTODO AUTÔMATO CELULAR EM TRÊS DIMENSÕES <sup>(1)</sup>

Luciana de Oliveira Pereira <sup>(2)</sup>

Flávio Faria de Oliveira <sup>(3)</sup>

Paulo Rangel Rios <sup>(4)</sup>

José Adilson de Castro <sup>(5)</sup>

## Resumo

A cinética da recristalização é tradicionalmente analisada usando a teoria clássica de Johnson-Mehl, Avrami e Kolmogorov (Teoria de JMAK). Esta teoria supõe-se que a nucleação aconteça em locais aleatórios na matriz deformada. Esta suposição é importante porque a aleatoriedade permite o uso de uma relação geométrica exata para corrigir o efeito da interferência entre as regiões recristalizadas. A simulação da recristalização em três dimensões pelo método do Autômato Celular (AC) é descrita para investigar o efeito da distribuição não aleatória dos núcleos quando estes variam desde uma distribuição periódica até quando estão agrupados. Os resultados das simulações são comparados com a descrição microestrutural normalmente usada na evolução das transformações. Este trabalho mostra que a contigüidade tem uma particularidade relevante para detectar os desvios microestruturais da aleatoriedade. Isto é confirmado pelos resultados obtidos.

**Palavras-chave:** recristalização, microestrutura, simulação computacional, Autômato Celular.

## Abstract

The kinetic of recrystallization is traditionality analyzed through theories of Johnson-Mehl<sup>1</sup>, Avrami<sup>2-4</sup> and Kolmogorov<sup>5</sup>, the JMAK theory. In this theory, nucleation is assumed to take place on sites randomly located in the matrix. This assumption is important because randomness allows one to use an exact geometrical relationship to take care of the impingement. The effect of non-random nuclei location and the efficiency of microstructural descriptors in assessing such a situation are studied. Cellular automata simulation of recrystallization in three dimensions is carried out to simulated microstructural evolution for nuclei distribution ranging from a periodic arrangement to clusters of nuclei. The simulation results are compared in detail with microstructural descriptors normally used to follow transformation evolution. It is shown that the contiguity is particularly relevant to detect microstructural deviations from randomness. This work focuses on recrystallization but its results are applicable to any nucleation and growth transformation.

**Keywords:** microstructure, recrystallization, computer simulation, Cellular Automata.

(1) Contribuição técnica a ser apresentada na Seção Técnica Iniciação Científica-Tecnológica, integrante do 61º Congresso Anual da ABM – Internacional nos dias 24 a 27 de julho 2006 Rio de Janeiro.

(2) Graduanda em Engenharia Metalúrgica / Aluna de Iniciação Científica da Universidade Federal Fluminense – UFF, Volta Redonda RJ.

(3) Graduando em Engenharia de Produção / Aluno de Iniciação Científica da Universidade Federal Fluminense – UFF, Volta Redonda RJ.

(4) Prof. PhD em Engenharia Metalúrgica, coordenador do curso de pós-graduação em Engenharia Metalúrgica da Universidade Federal Fluminense – UFF.

(5) Prof. PhD em Engenharia Metalúrgica da Universidade Federal Fluminense – UFF, Volta Redonda RJ.

## INTRODUÇÃO

Quando um material é deformado plasticamente ocorre um aumento da sua energia devido ao aumento da densidade de defeitos. Essa deformação resulta numa microestrutura diferente da existente antes da deformação.

A recristalização é o surgimento de novos grãos livres de deformação que crescem à custa da energia armazenada na deformação. Após a completa recristalização o metal apresenta microestrutura similar a que existia antes. O termo “recristalização” é chamado de recristalização primária para distingui-la do processo de crescimento exagerado de grãos e é normalmente dividida em duas etapas:

- a) Nucleação – corresponde ao aparecimento de novos grãos na microestrutura;
- b) Crescimento – os novos grãos substituem o material deformado.

Estes eventos ocorrem consecutivamente para cada grão em particular, mas podem estar ocorrendo em qualquer tempo por todo o material.

O progresso da recristalização é acompanhado através de medidas como fração transformada e área das interfaces internas. A cinética é analisada usando a teoria clássica de Johnson-Mehl<sup>1</sup>, Avrami<sup>2-4</sup> e Kolmogorov<sup>5</sup> teoria de JMAK, que supõe nucleação aleatória na matriz deformada. Esta suposição é importante porque a aleatoriedade permite o uso de uma relação geométrica exata para corrigir o efeito da interferência “*impingement*” entre as regiões recristalizadas. Essa teoria também supõe que a taxa de crescimento é constante e uniforme, que a interferência é uniforme e que os grãos são esféricos.

Neste trabalho é feita uma investigação sobre o efeito da localização dos núcleos quando estes estão distribuídos de forma não aleatória na matriz deformada. Para este propósito, os núcleos foram distribuídos numa configuração periódica e agrupada “*clusters*” na matriz utilizada pelo método AC. Este método é utilizado para simular a recristalização, e a partir das simulações, a evolução microestrutural é avaliada em cada caso através do método do caminho microestrutural.

## MATERIAL E MÉTODOS

### *O Autômato Celular em Três Dimensões*

As simulações foram realizadas no código que simula a recristalização utilizando o método AC, em linguagem Fortran 90/95.

A matriz consistiu de uma malha cúbica com 304x304x304 células e a vizinhança de von Neumann foi utilizada (Figura 1). Foi considerado que cada célula equivale a uma unidade de volume, portanto, o volume total era de 28.094.464 unidades de volume.

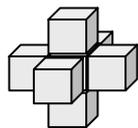


Figura 1 – Configuração de von Neumann em 3D considerando os vizinhos mais próximos. A célula central é o núcleo e as demais são os vizinhos.

Neste trabalho foi considerada a nucleação por Saturação de Sítios, ou seja, todo evento de nucleação ocorre no início da transformação e após iniciar o crescimento nenhum novo núcleo aparece. A velocidade de crescimento durante as simulações foi mantida constante. O número de núcleos inicial foi de 4096 núcleos, sendo o número de núcleos por unidade de volume,  $N_V$ , igual a 1/6859.

Para a distribuição periódica, os núcleos foram localizados no centro de cada cubo de 19x19x19 células, num total de 4096 cubos. No caso da distribuição agrupada, foi permitido que a nucleação ocorresse aleatoriamente dentro de um número de cubos, selecionados também ao acaso, num conjunto de 4096 cubos mencionados anteriormente. Primeiro, um único núcleo é distribuído aleatoriamente em cada um dos 4096 cubos. A seguir, 2048 cubos são escolhidos ao acaso e 2 núcleos são distribuídos em cada um. Então, 1024 cubos são selecionados também ao acaso e são distribuídos 4 núcleos em cada cubo. O número mínimo de cubos foi de 64 com 64 núcleos em cada um deles.

### *A teoria de JMAK*

O primeiro passo da teoria de JMAK é modelar a nucleação e o crescimento dos grãos como se eles crescessem independentemente um do outro. O volume total obtido neste caminho é muito maior do que o volume real e é conhecido como volume estendido,  $V_E$ . Esta quantidade é geralmente dividida pelo volume total resultando na fração volumétrica estendida,  $V_{VE}$ , que é a soma dos volumes de todos os grãos individuais supondo que os mesmos cresçam sem interferência.

O segundo passo consiste em relacionar a fração volumétrica estendida,  $V_{VE}$ , à fração volumétrica real,  $V_V$ . Isto pode ser feito com uma relação geométrica matematicamente exata, para uma distribuição aleatória dos núcleos, visto a seguir:

$$V_V = 1 - \exp(-V_{VE}) \quad \text{ou} \quad V_V = 1 - \exp(-kt^n) \quad (1)$$

onde  $k$  e  $n$  são constantes. Esta equação é chamada de equação de JMAK.

### *Metodologia do Caminho Microestrutural*

A Figura 2 mostra esquematicamente a fração recristalizada em etapa intermediária da recristalização. Existem dois tipos de interfaces: entre regiões recristalizadas e deformadas,  $S_V$ , e entre regiões recristalizadas,  $S_{VR}$ , por unidade de volume.

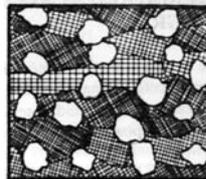


Figura 2 – Etapa intermediária da recristalização. As áreas claras representam regiões recristalizadas e as áreas escuras representam regiões não recristalizadas.

A microestrutura é caracterizada pela área interfacial entre o material recristalizado e não recristalizado,  $S_V$ , e é relacionada com a área interfacial estendida,  $S_{VE}$ . Como no modelo JMAK, esta relação só é válida para grãos

distribuídos aleatoriamente. DeHoff<sup>6</sup> propôs que a recristalização segue um trajeto no espaço e é representado por  $S_V \times V_V$ , conhecido por caminho microestrutural.

## RESULTADOS

### Fração Volumétrica, $V_V$

A fig. 3 mostra a simulação de  $V_V$  em função do tempo. A linha cheia corresponde à nucleação aleatória e está de acordo com a seguinte expressão<sup>7</sup>:

$$V_V = 1 - \exp\left(-\frac{4}{3} N_V t^3\right) \quad (2)$$

A transformação ocorre mais rapidamente para a nucleação periódica e mais devagar para o agrupado. No caso da nucleação agrupada, a transformação ocorre logo no início. A razão para isso é a interferência, ou seja, o crescimento de um grão é retardado quando este se encontra com outro grão também em crescimento. Para agrupamentos mais severos, a transformação é ainda mais demorada.

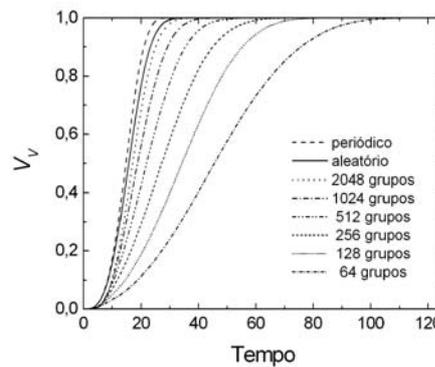


Figura 3 – Fração volumétrica contra o tempo, simulado pelo AC. A cinética é mais rápida para nucleação periódica e mais lenta para a nucleação agrupada.

### Área Interfacial entre regiões transformadas e não transformadas, $S_V$

A Fig. 4 mostra  $S_V$  simulado em função do tempo. A linha cheia corresponde à nucleação aleatória e mostra-se em concordância com a expressão<sup>7</sup> descrita a seguir:

$$S_V = 3(36N_V)^{\frac{1}{3}}(1-V_V) \left[ \ln\left(\frac{1}{1-V_V}\right) \right]^{\frac{2}{3}} \quad (3)$$

No início da transformação os grãos crescem sem interferência e em consequência disso, há um aumento de  $S_V$ . Quando começa a ocorrer o choque entre os grãos já recristalizados, a área interfacial entre grãos transformados e não transformados começa a diminuir. Assim, quando a transformação se der por completa, ou seja, quando todos os grãos estiverem recristalizados, então  $S_V$  é igual a zero, predominando somente a área interfacial entre grãos transformados. Com isso, o pico mais alto na Fig. 4 é da nucleação periódica em razão da cinética de transformação explicado anteriormente. Os valores máximos que  $S_V$  atinge, diminui

quando os núcleos agrupados se encontram num estágio mais severo deste agrupamento.

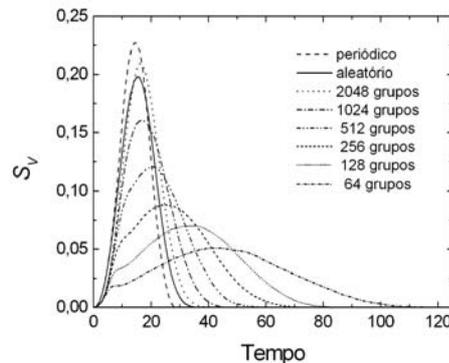


Figura 4 – Área interfacial entre grãos recristalizados e a matriz deformada contra o tempo, simulado pelo AC. O pico representa o valor máximo de  $S_V$ .

A Fig. 5 mostra o pico mais baixo para um agrupamento mais severo, em razão da fração volumétrica, representado pelo caminho microestrutural. Este pico é em função dos choques entre os grãos dentro de cada cubo que ocorrem já no início da transformação.

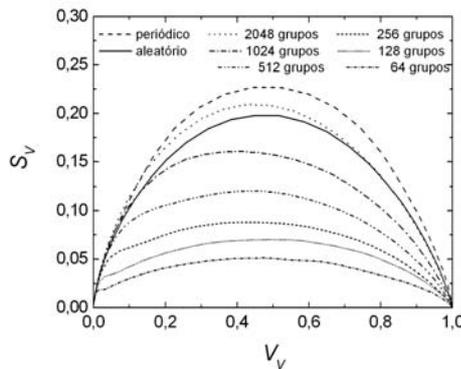


Figura 5 – Área interfacial entre grãos recristalizados e a matriz deformada contra a fração volumétrica, simulado pelo AC.

### Parâmetro Contiguidade, $C_R$

Uma quantidade importante neste trabalho é o parâmetro contigüidade. A contigüidade é a relação entre da área interfacial imóvel (entre os grãos recristalizados) e a área interfacial total e é muito sensível aos desvios da aleatoriedade<sup>8,9</sup>. Este parâmetro é definido como<sup>7</sup>:

$$C_R = \frac{2S_{VR}}{S_V + 2S_{VR}} \quad (4)$$

A fig. 6 mostra a contigüidade em função da fração volumétrica, simulados pelo AC. A linha cheia corresponde à distribuição aleatória dos núcleos.

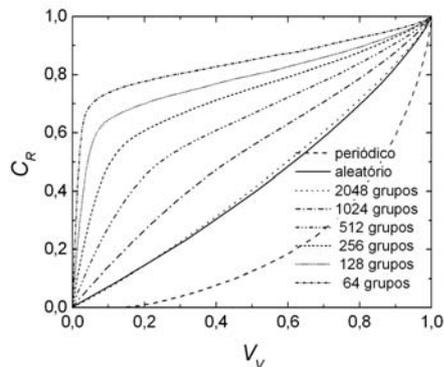


Figura 6 – Contigüidade contra o tempo, simulado pelo AC.

A comparação da Fig. 6 com as Fig. 3 – 5 mostra a contigüidade como um bom parâmetro para avaliar os desvios da aleatoriedade dos núcleos, conforme Vandermeer<sup>8</sup>. A linha sólida na figura divide o plano ( $C_R \times V_V$ ) em duas regiões distintas. Abaixo desta linha encontra-se a região em que os núcleos tendem a um arranjo periódico. A região acima da linha cheia corresponde àquela em que os núcleos se desviam da aleatoriedade através de agrupamentos.

## DISCUSSÃO

A expressão exata para a distribuição aleatória é descrita pela Eq. 2. Esta equação pode ser generalizada pela velocidade em função do tempo,  $G^7$ :

$$G = \frac{G_0}{t^k} \quad (5)$$

onde  $G_0$  e  $k$  são constantes. A Eq. 5 é usada para generalizar a Eq. 2:

$$V_V = 1 - \exp\left(-36N_V \left(\frac{G_0}{1-k}\right)^3 t^{3(1-k)}\right) \quad (6)$$

Para  $k=0$ ,  $G_0=v=1/3$  e a Eq. 6 se reduz a Eq. 2. Isto é válido para transformações de Saturação de Sítios quando  $k \neq 1$ . A Fig. 7 mostra os resultados das três simulações: periódica, aleatória e 128 clusters.

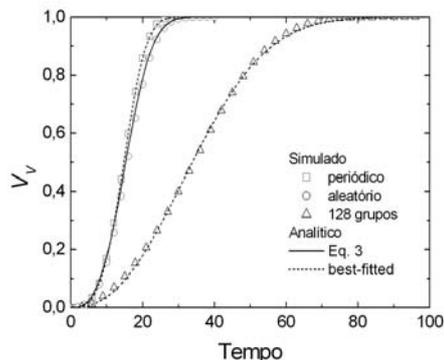


Figura 7 – Fração volumétrica contra o tempo. Os dados da simulação são ajustados pela cinética de JMAK.

A nucleação aleatória é descrita pela Eq. 2 e, através da Eq. 6, é feito um ajuste (best-fitted) para descrever a nucleação periódica e agrupada. Este produziu um coeficiente de correlação de  $R^2=0,999$ , o que confirma ser um bom ajuste.

Para a nucleação periódica isso resulta num aumento da velocidade aparente em função tempo:

$$G_{per} \propto t^{0.13} \quad (7)$$

Para a nucleação agrupada, a velocidade aparente diminui com tempo:

$$G_{clu} \propto t^{-0.21} \quad (8)$$

As Eqs. 7 e 8 mostram que uma análise baseada unicamente sobre a fração volumétrica pode gerar uma conclusão errônea, visto que a velocidade interfacial durante as simulações permaneceu constante. Mas o resultado obtido na nucleação agrupada é muito interessante, pois, acredita-se que a velocidade diminui com o tempo durante a recristalização. A seguir, têm-se as possíveis razões para este fato:

- Recuperação<sup>10</sup>: resulta na diminuição da energia armazenada durante a recristalização e, conseqüentemente, na diminuição da velocidade interfacial.
- Gradiente de deformação<sup>11</sup>: a idéia é que a recristalização comece em regiões de energia mais elevada e crescesse progressivamente em regiões de menor energia. Isto causaria uma diminuição da velocidade interfacial.

Uma indicação de aleatoriedade é frequentemente indicada traçando o caminho microestrutural,  $S_V \times V_V$ , e para esta análise, a Eq. 3 é utilizada. A Fig. 8 mostra as simulações das distribuições analisadas. A Eq. 3 é ajustada à cinética da nucleação periódica e agrupada, fazendo variar  $N_V$ . Este número “aparente” de núcleos por unidade de volume pode ser calculado.

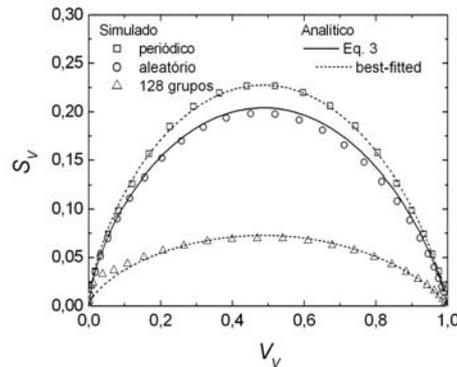


Figura 8 – Área interfacial entre grãos recristalizados e a matriz deformada contra a fração volumétrica. Os dados das simulações são ajustados pela Eq. 3 permitindo variar  $N_V$ .

Para a nucleação aleatória, o número “aparente” de núcleos por unidade de volume,  $N_{Vper} \cong 2,0 \times 10^{-4}$ , é aproximadamente 4/3 do valor usado na simulação,  $N_V \cong 1.458 \times 10^{-4}$ . O coeficiente de correlação obtido foi  $R^2=0,99877$ .

Para a nucleação agrupada,  $N_{Vclus} \cong 6,591 \times 10^{-6}$ . O coeficiente de correlação foi  $R^2=0,97827$ . A concordância não foi muito boa em função do pico observado para

fração volumétrica aproximadamente 0,025 como pode ser visto na Fig. 8. Acima de  $V_V \approx 0,1$  a concordância é boa.

O pico formado no início da transformação é uma indicação de nucleação agrupada. Um caso de agrupamento mais severo é mostrado na Fig. 9 com 64 núcleos em cada 64 cubos escolhidos.

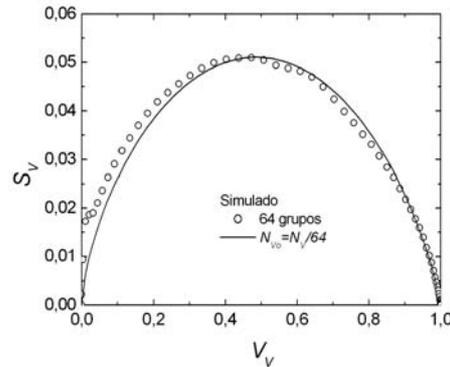


Figura 9 – Área interfacial entre grãos recristalizados e a matriz deformada contra a fração volumétrica. A curva foi obtida variando o valor de  $N_V$  como mostrado no texto.

Depois que ocorre a interferência dentro dos cubos a transformação se dá de maneira que os 64 cubos se comportem como se cada um fosse uma região, resultando num  $N_{V_0} = 1/(64 \times 6859) = 1/(64 N_V)$ , um valor 64 vezes menor que o valor médio,  $N_V = 1/6859$ . Pode-se observar que o acordo entre a curva gerada com  $N_{V_0}$  e os dados da simulação é bom para valores  $V_V > \approx 0,10$ .

## CONCLUSÃO

Os resultados das simulações foram comparados com a descrição microestrutural e foi possível chegar as seguintes conclusões:

1. A cinética convencional analisada quando baseada somente na fração volumétrica em função do tempo pode gerar uma velocidade interfacial errônea. Como visto na nucleação agrupada, a velocidade diminui com o tempo mesmo realizando as simulações com velocidade interfacial constante.
2. A partir das simulações foi possível observar que a contigüidade é a mais sensível a não aleatoriedade do que a outras medidas consideradas como  $V_V$ ,  $S_V$  e  $S_{VR}$ . Consequentemente, para uma análise de maior confiança deve-se incluir a contigüidade como sugerido por Vandermeer<sup>9</sup>, a fim de estabelecer que a não aleatoriedade influencie a evolução microestrutural.

## AGRADECIMENTOS

Esse trabalho teve o suporte do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq, Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoa de Nível Superior, CAPES e a Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado do Rio de Janeiro, FAPERJ.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1)JOHNSON, W.A., MEHL, R.F., Reaction kinetics in processes of nucleation and growth. **Transactions AIME** , 135 : 416-44, 11939.
- 2)AVRAMI, M.J., Kinetics of phase change I general theory. **The Journal of Chemical Physics** , 7(12) : 1103-1112, 1939.
- 3)AVRAMI, M.J., Kinetics of phase change II transformation-time relations for random distribution of nuclei. **The Journal of Chemical Physics** , 8(2) : 214-224, 1940.
- 4)AVRAMI, M.J., Kinetics of phase change III granulation, phase change, and microstructure kinetics of phase change. **The Journal of Chemical Physics** , 9(2) : 177-184, 1941.
- 5)KOLMOGOROV, N.A., The statistics of crystal growth in metals. **Isvestiia Akademii Nauk SSSR - Serii Matematicheskaja** , 1:333-359, 1937.
- 6)DeHoff, R.T., Annealing Processes Recovery, Recrystallization and Grain Growth (editado por N. Hansen, D. Juul-Jensen, T. Leffers e B. Ralph), p. 35–52. Risø National Laboratory, Roskilde, Dinmark, 1986.
- 7)RIOS, P.R., OLIVEIRA, V.T., PEREIRA, L.O., PEREIRA, M. R., CASTRO, J.A. Cellular Automata Simulation of Site-saturated and Constant Nucleation Rate Transformations in Three Dimensions. **Materials Research** , 9 : 2 , 2006.
- 8)VANDERMEER, R.A. Microstructural descriptors and the effects of nuclei clustering on recrystallization path kinetics. **Acta Materialia** , 53 (5) : 1449-1457, 2005.
- 9)VANDERMEER, R.A., JENSEN, D.J. Effects of nuclei clustering on recrystallization kinetics. **Materials Science Fórum** , 467-470 : 193-196, 2004.
- 10) STÜWE, H.P., PADILHA, A.F., SICILIANO, F. Competition between recovery and recrystallization. **Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing** , A333 (1-2):361-367, 2002.
- 11) RIOS, P.R. Modeling time dependence of the average interface migration rate in site-saturated recrystallization. **Metallurgical and Materials Transactions** , A , 28 (4) : 939-946 , 1997.