

MODELAMENTO DE SOLIDIFICAÇÃO DE MATERIAIS POLICRISTALINOS ATRAVÉS DO MÉTODO DO CAMPO DE FASES¹

Celso Luiz Moraes Alves²
Paulo Rangel Rios³
João Luiz Lopes Rezende⁴

Resumo

Para o caso de metais, grande parte das propriedades desejadas no produto final está ligada a sua estrutura imediatamente após a solidificação. Portanto, o uso de modelos computacionais para simular o fenômeno de solidificação pode ser vital para a melhor compreensão do impacto de parâmetros do material e de parâmetros do processo na estrutura bruta de fusão, obtida imediatamente após a solidificação. Além do mais, todos os metais passam, pelo menos uma vez, pelo processo de solidificação, com exceção dos metais obtidos via tecnologia da metalurgia do pó. Consequentemente, nesse trabalho foram desenvolvidos dois tipos de implementação numérica para modelar e simular o crescimento dendrítico de cristais em meio a líquidos super-resfriados. Algumas implementações consideraram a presença da anisotropia com crescimento das dendritas secundárias e o encontro das interfaces de vários núcleos – impingement dos grãos – para o caso de solidificação de materiais metálicos policristalinos. Uma importante ressalva é que todas as simulações foram realizadas para o caso de substâncias puras, excluindo, assim, o caso de ligas.

Palavras-chaves: Solidificação; Modelo do campo de fases; Materiais policristalinos.

MODELING OF SOLIDIFICATION OF POLYCRYSTALLINE MATERIALS THROUGH PHASE-FIELD METHOD

Abstract

In case of metals, the most part of properties desired in finished products are linked with their inter structure immediately after the solidification. Therefore, the use of computational models in order to simulate the solidification phenomenon may be vital to greater comprehension of the impacts of material parameters and the impacts of process parameters in “as-cast structure”, obtained after the solidification. Besides this, all metals pass at least once in solidification process, except the metals obtained through powder metallurgy. Consequently, in the work was developed two types of numerical implementation in order to model and simulate the dendritic growth in crystals into undercooling liquid. Some implementations considered the presence of anisotropy with the growth of sidebranches and the interface shock between nucleuses (impingement of grains) present in solidification of polycrystalline metal materials. An important thing in this work is all simulations were made for case of pure substance, excepting, thus, alloys.

Key words: Solidification; Phase-field model; Polycrystalline materials.

¹ Contribuição técnica ao 67º Congresso ABM - Internacional, 31 de julho a 3 de agosto de 2012, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

² Mestrando, bolsista capes, Eng Metalúrgica, EEIMVR, Universidade Federal Fluminense (UFF), UFF.

³ Prof. PhD em Engenharia Metalúrgica, Prof. Titular do curso de pós-graduação em Eng. Metalúrgica, EEIMVR, UFF, Brasil.

⁴ PhD e Staff, Universidade RWTH de Aachen, Alemanha.

1 INTRODUÇÃO

A aplicação de materiais à engenharia está intimamente ligada às propriedades desejadas no produto final. Para o caso dos metais, uma grande parte das propriedades desejadas no produto final está ligada a sua estrutura imediatamente após a solidificação,⁽¹⁾ também conhecida como estrutura “bruta de fusão”.

A estrutura bruta de fusão é caracterizada por parâmetros como: espaçamento interdendrítico, perfil de segregação, tamanho de grão, porosidades, presença de precipitados, taxa de resfriamento e etc, que são vitais na determinação das propriedades mecânicas.⁽¹⁾ Além disso, conforme definido por Garcia,⁽¹⁾ todos os metais passam, pelo menos uma vez, pelo processo de solidificação, com exceção dos materiais obtidos via tecnologia da metalurgia do pó. Isso evidencia a relevância no estudo do processo de solidificação dos metais.

Os materiais metálicos ao se solidificarem, segundo a precipitação de fase sólida em meio líquido super-resfriado, formam uma estrutura denominada estrutura dendrítica.⁽²⁾ A Figura 1⁽³⁾ mostra um exemplo desse tipo de estrutura.

O crescimento da estrutura dendrítica acontece em uma direção principal com ramificações laterais, adquirindo, assim, a forma semelhante à árvore conhecida popularmente como “pinheiro”.

Outro campo de estudo vastamente explorado pela engenharia de materiais é o modelamento matemático e computacional aplicado a fenômenos metalúrgicos. Alguns exemplos desse tipo de aplicação são: modelamento de crescimento de grão usando método de Monte Carlo,⁽⁴⁻⁶⁾ modelamento de recristalização usando método de Autômato Celular,^(7,8) modelamento de processos de redução de minérios de ferro,⁽⁹⁾ entre outros.

De forma não diferente, a modelagem computacional é também aplicada ao processo de solidificação⁽¹⁰⁻¹³⁾ devido sua relevância dentro do processo de obtenção de materiais metálicos e estar presente também em processos de revestimento metálicos e refino zonal.⁽²⁾

A fim de exemplificar essa modelagem no campo da solidificação, a Figura 2 apresenta o crescimento dendrítico em 3D simulado por Kobayashi⁽¹⁴⁾ para substância pura.

Portanto, esse trabalho irá explorar dois métodos de implementação numérica com base no método do campo de fases (phase-field), para simular o processo de solidificação de materiais puros, considerando a solidificação de somente um núcleo na matriz e a solidificação de materiais policristalinos puros, semelhante ao proposto por Warren e Co-autores.⁽¹⁵⁾

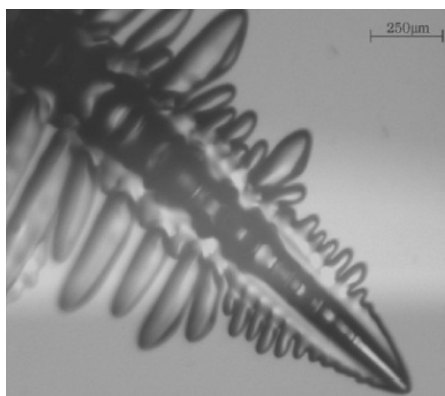


Figura 1. Crescimento da estrutura dendrítica.⁽³⁾

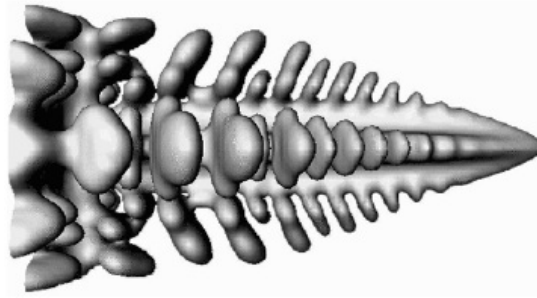


Figura 2. Simulação do crescimento dendrítico de substância pura em líquido super-resfriado.⁽¹⁴⁾

2 MATERIAL E MÉTODOS

2.1 Método do Campo de Fases (*Phase-Field*)

O método do campo de fases se baseia na teoria do parâmetro de ordem proposta por Landau⁽¹⁶⁾ e na teoria proposta de Cahn e Coautores como bem explorada por Emmerich.⁽¹⁷⁾ Segundo essa formulação, define-se a chamada Variável do Campo de Fases (ϕ) que assume diferentes valores dependendo da posição, \vec{x} , no sistema. Nas metodologias de modelagem computacional baseadas nas propostas de Kobayashi⁽¹⁸⁾ e Warren e Boettinger,⁽¹⁹⁾ a variável do campo de fases pode assumir os seguintes valores: $\phi = +1$, para a região sólida; $\phi = 0$, para a região líquida; e valores $0 < \phi < +1$, para a região da interface entre o sólido e o líquido.

Karma e Rappel⁽²⁰⁾ e também Provatas e Elder⁽¹⁰⁾ alteram os domínios da variável do campo de fases para: $\phi = +1$, para a região sólida; $\phi = -1$, para a região líquida; e valores de $-1 < \phi < +1$, para a região da interface entre o sólido e o líquido.

Independente do domínio da variável do campo de fases, a formulação do parâmetro do funcional de energia (F), para o caso de solidificação de substâncias puras, é igual. Detalhes da formulação do funcional de energia e a sua relação com a variável do campo de fases e com o campo de energia foi discutida em detalhes por Provatas e Elder.⁽¹⁰⁾

De uma maneira simplificada, o método do campo de fases aplicado em solidificação de substâncias puras se resume, principalmente, na solução numérica de equações diferenciais parciais da variável do campo de fases e do campo de energia.

As principais equações que descrevem o método do campo de fases, aplicado em solidificação de substância pura, estão descritas na Equação 1 (equação diferencial parcial da variável do campo de fases) e na Equação 2 (equação diferencial parcial do campo de energia térmica).

$$\tau \frac{\partial \phi}{\partial t} = W_{\phi}^2 \nabla^2 \phi - \frac{dg(\phi)}{d\phi} - \frac{L(T - T_m)}{HT_m} \frac{dP(\phi)}{d\phi} + \eta'(\vec{x}, t) \quad (1)$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D \nabla^2 T + \frac{L}{c_p} \frac{dh(\phi)}{d\phi} \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (2)$$

Onde: τ é caracterizado como a escala de tempo do modelo, W_{ϕ} é a espessura da interface, L é o calor latente de fusão para reação líquido-sólido, T é a temperatura, T_m é a temperatura de fusão, H é a densidade de entalpia local, D é a difusividade térmica e c_p é o calor específico à pressão constante.

O termo $\eta'(\vec{x}, t)$ representa o ruído gerado na região da interface sólido-líquido. Karma e Rappel⁽²⁰⁾ consideram que esse ruído segue uma distribuição aleatória normal com média igual a zero e variância relacionada aos parâmetros do material.⁽²⁰⁾ Contudo, Warren e Boettinger⁽¹⁹⁾ consideram o ruído como função de um

número aleatório (r) gerado entre -1 e $+1$, e como função da variável do campo de fases. A proposta equação proposta por esses autores está descrita pela Equação 3.

$$\eta'(\vec{x}, t) = 16 \alpha r \phi^2 (1 - \phi)^2 \quad (3)$$

Onde: α representa a amplitude do ruído (dado de entrada na modelagem).

Esse ruído é imposto na região interface sólido-líquido a fim de promover o crescimento das dendritas secundárias.

As funções $g'(\phi)$, $P'(\phi)$ e $h'(\phi)$ são definidas, segundo Provatas e Elder,⁽¹⁰⁾ como:

$$\frac{dg(\phi)}{d\phi} = -\phi + \phi^3 \quad (4)$$

$$\frac{dP(\phi)}{d\phi} = (1 - \phi^2)^2 \quad (5)$$

$$\frac{dh(\phi)}{d\phi} = \frac{1}{2} \quad (6)$$

Além das equações e considerações acima, é importante mencionar que os parâmetros τ e W_ϕ são influenciados pela anisotropia. Portanto, esses parâmetros são função de um ângulo θ , na qual pode ser definido pela Equação 9.

O ângulo θ é entre a normal da interface sólido-líquido do modelo e o eixo de referência do sistema.

$$\tau(\theta) = \tau A(\theta) \quad (7)$$

$$W_\phi(\theta) = W_\phi A(\theta) \quad (8)$$

$$\theta = \arctan \left(\frac{\partial \phi / \partial y}{\partial \phi / \partial x} \right) \quad (9)$$

Conforme descrito nas Equações 7 e 8, os termos τ e W_ϕ são definidos segundo uma função de anisotropia que varia com a variável θ conforme abaixo:

$$A(\theta) = 1 + \varepsilon_4 \cos(4\theta) \quad (10)$$

Onde: ε_4 é o grau de anisotropia da tensão superficial.

Para realização da simulação desse tipo de modelamento é necessário gerar a condição básica de solução das equações diferenciais propostas. Essa condição se caracteriza pela existência de uma região já solidificada, com $\phi = +1$, uma região completamente líquida, com $\phi = -1$ e a região da interface sólido-líquido, com $-1 < \phi < +1$.

Portanto, sempre que se inicia a simulação, gera-se um núcleo inicial já solidificado em alguma região da matriz que caracteriza o líquido super-resfriado. A geração desse núcleo sólido satisfará as condições básicas e necessárias para o desenvolvimento da simulação, que é a existência de região sólida, líquida e da interface sólido-líquido.

Usando as equações descritas acima, bem como as considerações como dados de entrada e geração inicial do núcleo(s), tornou-se possível desenvolver um modelo computacional do campo de fases para solidificação de substâncias puras usando métodos numéricos de discretização de equações diferenciais parciais.^(21,22)

3 RESULTADOS

3.1 Modelo do Campo de Fases para o Crescimento de Um Núcleo

São apresentados na Figura 3 um comparativo apresentados por Kobayashi⁽¹⁸⁾ e os resultados obtidos pelo modelo desse trabalho.

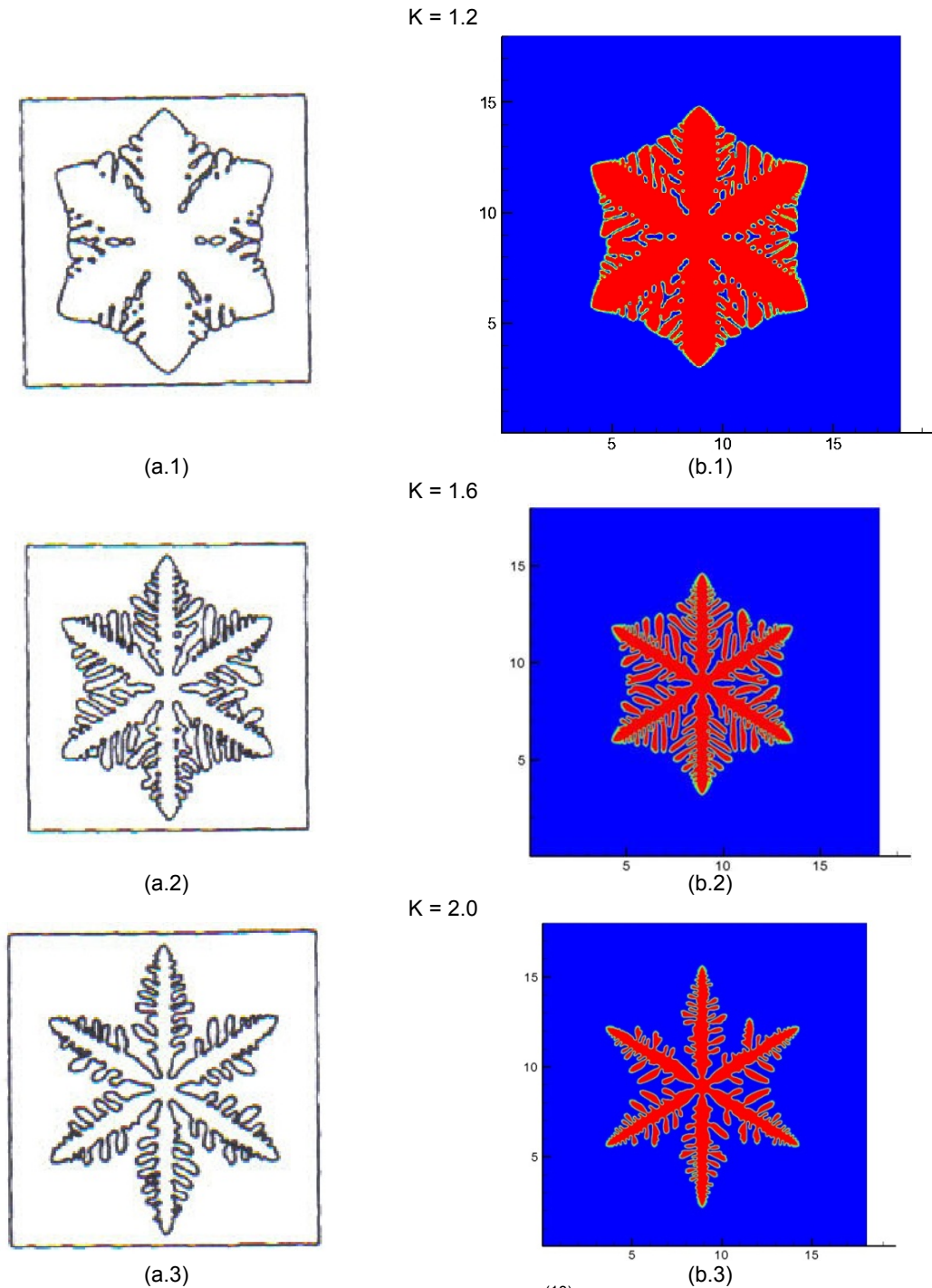


Figura 3. (a.1-3) Resultados apresentados por Kobayashi⁽¹⁸⁾ (b.1-3) resultados do presente trabalho. Sendo K a variável do calor latente adimensional.

Uma importante ressalva é que em ambos os modelos todos os parâmetros de entrada possuíam valores adimensionais e iguais.

De forma semelhante, a fim de explorar o modelo proposto por Karma e Rappel⁽²⁰⁾ e também por Provatas e Elder,⁽¹⁰⁾ gerou-se um modelo de solidificação de somente um núcleo, porém sem a utilização de ruído na interface para a ocorrência do crescimento da secundária. A Figura 4 apresenta os principais resultados.

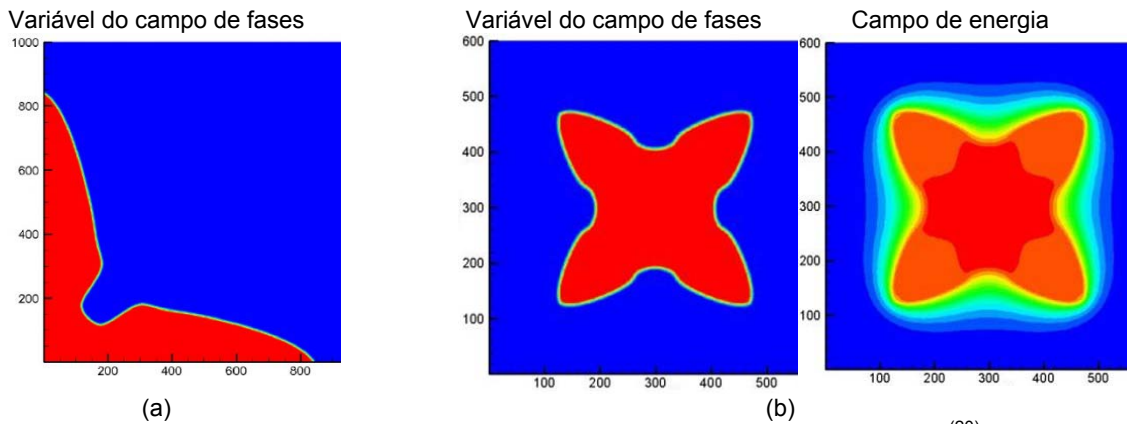
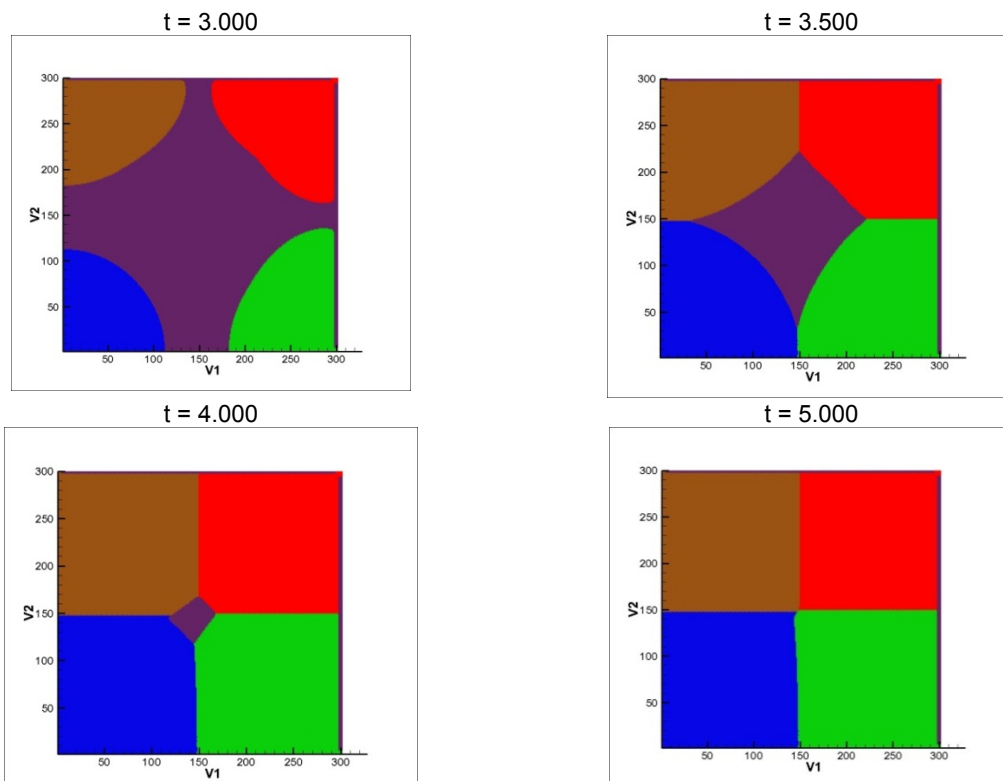


Figura 4. Resultados das simulações usando o modelo proposto Karma e Rappel⁽²⁰⁾ e Provatas e Elder.⁽¹⁰⁾ Ângulo inicial de rotação para o crescimento dendrítico(θ_0): (a) 0° ; (b) 45° . Todas as simulações sem aplicação do ruído.

3.2 Modelo do Campo de Fases para o Crescimento de Vários Núcleos

A Figura 5 trás os resultados obtidos para o caso de modelagem de vários núcleos na matriz, porém sem a geração do ruído na interface e sem influência da anisotropia. Os resultados aqui obtidos foram baseados no modelo proposto por Kobayashi.⁽¹⁸⁾



Obs: Os tempos estão em loops de simulação.

Figura 5. Modelo de solidificação de substância policristalina ausente de anisotropia e de ruído contendo 4 núcleos (um em cada vértice).

4 DISCUSSÃO

4.1 Modelo do Campo de Fases para o Crescimento de Um Núcleo

Pode-se observar pela Figura 3 que o modelo desenvolvido nesse trabalho gerou resultados muito semelhantes aos obtidos, anteriormente, por Kobayashi.⁽¹⁸⁾ Isso é evidenciado quando se comparam as figuras da referência 18 com as figuras obtidas nos resultados do modelo desenvolvido nesse trabalho. Como todas são geradas por valores de entrada adimensionais, os resultados são também adimensionais. Uma ressalva importante é que nesse tipo de modelagem e de implementação numérica, a variável do campo de fases, ϕ , varia no seguinte domínio: $0 \leq \phi \leq +1$.

A fim de explorar a outra metodologia de modelamento e implementação numérica, proposta por Karma e Rappel⁽²⁰⁾ e também por Provatas e Elder,⁽¹⁰⁾ na qual a variável do campo de fases, ϕ , varia no domínio entre $-1 \leq \phi \leq +1$, gerou-se um modelo, sem implementação do ruído presente na interface, porém considerando a anisotropia do modelo.

Observando a Figura 4, considera-se, de fato, que a metodologia proposta por Karma e Rappel⁽²⁰⁾ e também por Provatas e Elder⁽¹⁰⁾ é eficiente na geração de modelos computacionais que simulem o crescimento dendrítico, apesar de não ter sido explorado nesse trabalho a implementação com o ruído na interface, na qual daria origem as braços secundários dendríticos.

4.2 Modelo do Campo de Fases para o Crescimento de Vários Núcleos

No modelo implementado nesse trabalho, não foram consideradas a anisotropia do crescimento dendrítico e nem a geração do ruído presente na interface sólido-líquido. Contudo, baseando-se na metodologia proposta por Kobayashi,⁽¹⁸⁾ implementou-se um modelo computacional que simulasse o crescimento de quatro núcleos simultaneamente, a fim de que com essa proposta, o modelo gerasse resultados semelhantes aos observados em policristais.

Considerando-se os resultados apresentados por Warren e Coautores⁽¹⁵⁾ e apresentados abaixo na Figura 6, observa-se semelhança entre os resultados. Assim, é evidente que esse trabalho está sendo conduzindo na direção correta para obter um sólido modelo que simule a solidificação de materiais policristalinos puros.

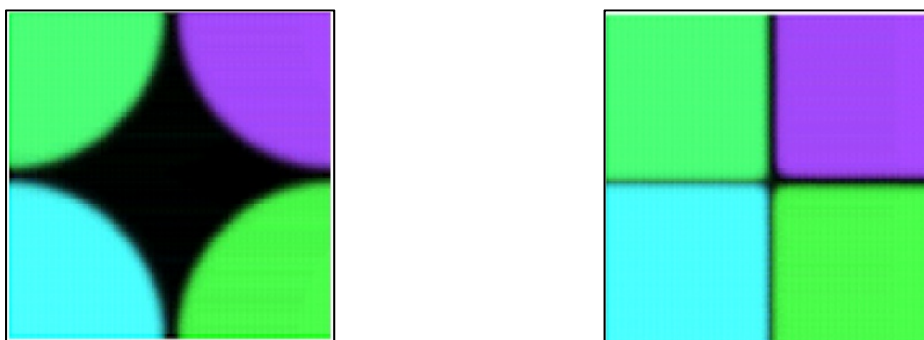


Figura 6. Resultados apresentados por Warren e Coautores⁽¹⁵⁾ na geração de modelos de campo de fases aplicados a solidificação de policristais puros. Para esse caso, não considerou-se a geração de ruído na interface e nem a influência da anisotropia.

5 CONCLUSÃO

Pelos resultados observados nesse trabalho, pode-se concluir que ambas as metodologias propostas para implementação numérica de modelos de solidificação usando o método de campo de fases são consistentes. A metodologia proposta por Kobayashi⁽¹⁸⁾ e Warren e Boettinger,⁽¹⁹⁾ na qual variável do campo varia no domínio $0 \leq \phi \leq +1$ apresentaram bons resultados, conforme discutido acima. Além disso, a metodologia proposta por Karma e Rappel⁽²⁰⁾ e por Provatas e Elder⁽¹⁰⁾ é também muito eficiente. Nessa última, a variável do campo de fases, ϕ , varia no domínio de $-1 \leq \phi \leq +1$.

O modelo de Kobayashi⁽¹⁸⁾ difere do modelo de Karma e Rappel⁽²⁰⁾ não somente quanto a definição da faixa de valores em que o campo de fases (*phase-field*) varia. Uma diferença mais importante é a possibilidade de se obter, no modelo de Karma e Rappel,⁽²⁰⁾ resultados quantitativos para valores de espessura da interface bem superiores ao chamado comprimento de capilaridade. Isso permite a obtenção, via campo de fases de resultados coincidentes com aqueles de um tratamento do tipo *sharp-interface*, com uma malha numérica bem mais grosseira que aquela empregada em tratamentos prévios. Além disso, o modelo de Karma e Rappel⁽²⁰⁾ torna possível, de fato, eliminar, via ajuste dos parâmetros de entrada, o resfriamento cinético na interface, o que garante o equilíbrio local na ponta da dendrita.

Um outra importante conclusão observada é que a implementação numérica de modelos de solidificação de policristais puros, usando o método do campo de fases, é viável de serem desenvolvidas e reproduzidas. Isso foi evidenciado pelos resultados obtidos no modelo que simulou a solidificação de quatro núcleos simultaneamente.

Dessas considerações, conclui-se também que, em trabalhos futuros, pode-se desenvolver e explorar um modelo de solidificação policristalino que considere a questão anisotrópica presente em cada núcleo e a geração de ruído nas interfaces sólido-líquido. Assim, tais modelos, podem gerar resultados mais próximos aos observados em práticas experimentais.

Agradecimentos

Os autores desse trabalho expressam profundo agradecimento a Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior, CAPES, ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq e a Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado do Rio de Janeiro, FAPERJ, por todo suporte fornecido durante o desenvolvimento desse trabalho. Além, claro, da cooperação com o Institut für Eisenhüttenkunde (IEHK) do Departamento de Metalurgia Ferrosa da Universidade Rheinisch-Westfaelische Technische Hochschule (RWTH) de Aachen, através do coautor João Luiz Lopes Rezende.

REFERÊNCIAS

- 1 GARCIA, A. Solidificação: fundamentos e aplicações. 2^a Edição – Campinas, SP. ISBN: 978-85-268-0782-2. Editora: **Unicamp**, 2007, pp. 19-28.
- 2 KURZ, W.; FISHER, D.J. Fundamentals of Solidification. Third Edition. ISBN: 0-87849-522-3. **Trans Tech Publications Ltd**, Switzerland, 1992, pp. 45-48.
- 3 SINGER H. M.; BILGRAM J. H. Three-dimensional reconstruction of xenon dendrites. **Europhys. Lett.** 68, 240, 2004.

- 4 OLIVEIRA, A.C.L. Simulação do crescimento normal e isotrópico de grão em 3-D por meio do método de Monte Carlo – Dissertação de Mestrado - **PG Engenharia Metalúrgica**, UFF, Volta Redonda, 2005.
- 5 RIOS, P.; DALPIAN, T.; BRANDAO, V.; CASTRO, J.; OLIVEIRA, A. Comparison of analytical grain size distributions with three-dimensional computer simulations and experimental data. **Scripta Materialia**, vol. 54, pp. 1633-1637, 2006.
- 6 SROLOVITZ, D. J.; ANDERSON, M.P.; GREY, G.S.; SAHNI, P.S. Grain growth in two dimensions. **Scripta Metallurgica**, Vol. 17, pp. 241-246, 1983.
- 7 H.W. HESSELBARTH and I.R. GÖBEL, Simulation of Recrystallization by Cellular Automata. **Acta Metall. Mater.**, vol. 39, n^o. 9, p.2135–2143, 1991.
- 8 ASSIS, W.L.S. Investigação do Efeito da Nucleação, da Velocidade de Crescimento e da Distribuição da Energia Armazenada na Recristalização pelo Método do Autômato Celular em Três Dimensões. – Dissertação de Mestrado - **PG Engenharia Metalúrgica**, UFF, Volta Redonda, 2006.
- 9 CASTRO, J. A.; SILVA, A. J.; D'ABREU, J. C. Modelamento bifásico e simulação computacional da auto-redução em forno de cuba. **Tecnologia em Metalurgia e Materiais**, São Paulo, v.2. n.4, p. 45-50, abr.-jun. 2006.
- 10 PROVATAS, N.; ELDER, K. Phase-Field Methods in Materials Science and Engineering. ISBN: 978-3-527-40747-7. **Wiley-VCH**, 2010, pp. 57-88.
- 11 FERREIRA, A.F.; SILVA, A. J.; CASTRO, J. A. Simulation of the Solidification of Pure Nickel Via the Phase-field Method. **Materials Research**, Vol. 9, No. 4, pp 349-356, 2006.
- 12 TAN, L. Multiscale Modeling of Solidification of Multi-Component Alloys. Ph.D. Thesis - **Cornell University**, China, 2007.
- 13 KREMEYER, K. Cellular Automata Investigations of Binary Solidification. **Journal Of Computational Physics** 142, pp. 243–262, 1998.
- 14 KOBAYASHI, R. A numerical approach to three-dimensional dendritic solidification. **Exp. Math.** 3, pp. 59–81, 1994.
- 15 WARREN, J. A.; KOBAYASHI, R.; LOBKOVSHY, A.E.; CARTER, W. C. Extending phase field models of solidification to polycrystalline materials. **Acta Materialia**, Vol. 51, pp. 6035-6058, 2003.
- 16 PROVATAS, N.; ELDER, K. Phase-Field Methods in Materials Science and Engineering. ISBN: 978-3-527-40747-7. **Wiley-VCH**, 2010, pp. 9-25.
- 17 EMMERICH, H. The Diffuse Interface Approach in Materials Science – Thermodynamics Concepts and Application of Phase-Field Models. ISBN: 3-540-00416-5. **Published by Springer**, 2003.
- 18 KOBAYASHI, R. Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth. **Physica D** 63, pp. 410-423, 1993.
- 19 WARREN, J. A.; BOETTINGER, W. J. Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase-field method. **Acta Metall. Mater.**, Vol. 43, No. 2, pp. 689-703, 1995.
- 20 KARMA, A. and RAPP, W. Phase-field model of dendritic sidebranching with thermal noise. **Physica Review E**, Vol. 40, No 4, pp. 3614-3625, 1999.
- 21 PROVATAS, N.; ELDER, K. Phase-Field Methods in Materials Science and Engineering. ISBN: 978-3-527-40747-7. **Wiley-VCH**, 2010, pp. 261-285.
- 22 ÖZISIK, M. N. Finite difference methods in heat transfer. ISBN: 0-8493-2491-2. **CRC Press**, 1994.