

SIMULAÇÃO DE NUCLEAÇÃO E CRESCIMENTO SIMULTÂNEO DE FASES DISTINTAS PELO MÉTODO DO AUTÔMATO CELULAR: REAÇÕES SIMULTÂNEAS VIA AUTÔMATO CELULAR¹

Wesley Luiz da Silva Assis²
André Luiz Moraes Alvers³
Simone Carreiro de Oliveira⁴
Celso Luiz Moraes Alves⁵
Tatiana Caneda Salazar⁶
Paulo Rangel Rios⁷

Resumo

O autômato Celular (AC) é um método computacional muito versátil, sua eficiência em simulações de nucleação e crescimento já foi apresentada em trabalhos prévios. Neste trabalho o método do AC foi empregado em simulação de reações de nucleação e crescimento de fases distintas que ocorrem simultaneamente. Foram estudados aspectos microestruturais dinâmicos tais como: fração volumétrica transformada, área superficial por unidade de volume, velocidade de avanço das interfaces, caminho microestrutural e microestrutura simulada em 3D. No fim do trabalho observa-se que, cada fase possui um perfil cinético próprio que contribui para cinética total da reação. Diferentemente do que acontece em outros casos de reações simultâneas, na etapa de crescimento, quem determina o fim da reação é a fase mais rápida. Todas as conclusões e afirmações sobre o estudo foram realizadas de acordo com as curvas e as microestruturas geradas no final de cada simulação computacional.

Palavras-chave: Transformação de fase; Recristalização; Autômato celular; Simulação de nucleação e crescimento.

SIMULTANEOUS BIRTH AND GROWTH SIMULATION OF DIFFERENT PHASES BY CELLULAR AUTOMATA METHOD (CAM): SIMULTANEOUS REACTIONS FROM CAM

Abstract

The Cellular Automata (CA) is a very versatile computational method, its efficiency in simulations of birth and growth has been shown in previous studies. In this work the method was used in the CA simulation of nucleation and growth reactions of distinct phases that occur simultaneously. We studied dynamic microstructural features such as volume fraction transformed, surface area per unit volume, forward speed of the interfaces, microstructural path and microstructure simulated in 3D. At the end of paper notes that each phase has a kinetic profile itself contributes to overall kinetics of the reaction. Unlike what happens in other cases of simultaneous reactions in the growth stage, who determines the order of the reaction is most rapid. All conclusions and statements about the study were performed according to the curves and the microstructures generated at the end of each simulation.

Key words: Phase transformation; Recrystallization; Cellular automata; Birth and growth simulation.

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

² Engenheiro Químico, Pós-Doutorando em Engenharia Metalúrgica, Universidade Federal Fluminense (UFF), Volta Redonda RJ, Brasil.

³ Graduando, Eng. Metalúrgica, Iniciação Científica, UFF, Volta Redonda, RJ, Brasil.

⁴ Eng. Metalúrgica, Doutoranda em Eng. Metalúrgica, UFF, Volta Redonda RJ, Brasil.

⁵ Eng. Metalúrgico, Mestrando em Eng. Metalúrgica, UFF, Volta Redonda RJ, Brasil.

⁶ Prof. PhD, Eng. Metalúrgica, Prof. Titular, pós-graduação em Eng. Metalúrgica, UFF, RJ, Brasil.

1 INTRODUÇÃO

1.1 Parâmetros Metalúrgicos

A recristalização é um fenômeno microestrutural bem conhecido. Ela ocorre a partir de uma matriz que sofreu deformação prévia. De uma maneira generalizada pode ser estudada em função de duas etapas básicas, tais como nucleação e crescimento.

- Nucleação – nesta etapa ocorre a ativação térmica de “novos” núcleos livres de deformação. Neste caso parâmetros como a distribuição espacial dos núcleos e a cinética de ativação “surgimento” destes núcleos são extremamente importantes.
- Crescimento – nesta etapa os “novos” núcleos aumentam de tamanho, até se tornarem grãos com reduzida densidade de discordâncias.

Uma primeira suposição seria a de que estes novos grãos crescem com velocidade constante. Porém a prática tem mostrado que esta velocidade decresce com o tempo de recristalização.

O tratamento analítico clássico da recristalização é baseado no modelo analítico de Johnson-Mehl⁽¹⁾, Avrami⁽²⁾ e Kolmogorov⁽³⁾ – teoria JMAK. O modelo da teoria JMAK, tem sido muito utilizados para descrever a cinética de recristalização.

Esta teoria e seus desenvolvimentos e extensões tem aplicação ampla em transformações tanto em materiais metálicos como em não metálicos. Em consequência, encontram-se aplicações deste formalismo a uma diversidade de transformações, tais como, austenita, perlita, recristalização, crescimento anormal em BaTiO₃, ‘spread’ da martensita e cristalização de polímeros.

Recentemente, Rios e Villa⁽⁴⁾ desenvolveram um método analítico novo e matematicamente exato para modelar situações em que mais de uma transformação ocorre simultaneamente e/ou sequencialmente. Este novo método permite se construir modelos analíticos para duas ou mais reações a partir dos modelos individuais teóricos. Além disto, permite extrair a cinética das reações individuais a partir da cinética total de transformação. O método analítico, entretanto, fornece apenas valores de parâmetros estereológicos, tais como: fração volumétrica, área por unidade de volume e caminho microestrutural.

Neste trabalho utilizou-se o método do autômato celular para simular reações simultâneas. A partir dos resultados gerados pela simulação computacional foi possível comparar com a solução analítica com a simulação. Além da construção dos gráficos foi possível gerar as microestruturas finais e intermediárias.

Um exemplo de aplicação da metodologia foi descrita no trabalho de Rios, Villa e Oliveira⁽⁵⁾, no qual foi utilizado o novo modelo analítico para analisar dados publicados por Magnusson, Jensen e Hutchinsson⁽⁶⁾, sobre a cinética de recristalização de aços IF. A partir dessa análise, provou-se que o método é eficiente ao tratar transformações simultâneas e sequenciais.

1.2 Parâmetros Computacionais

O modelamento microestrutural da recristalização permite variar grandezas tais como: distribuição espacial de núcleos e forma funcional da velocidade de crescimento. Além disto, permite a quantificação exata de todos os parâmetros microestruturais relevantes tais como: fração volumétrica recristalizada, área de interfaces por unidade de volume, distribuição de tamanhos dos grãos dentre outros.

Obter tais grandezas experimentalmente é um trabalho demorado que envolve erros experimentais consideráveis.

Um ponto importante, é que, ao se tomar Johnson-Mehl⁽¹⁾, Avrami⁽²⁾ e Kolmogorov⁽³⁾ como referência para simulação implicitamente também modela--se diversas outras transformações com características afins, embora cada uma tenha suas particularidades. No caso da recristalização, sem dúvida, o estado deformado é o grande problema, pois além de ser complexa, sua subestrutura pode diferir de metal para metal.

Dentre as hipóteses acima a de maior importante é que os núcleos estejam localizados de modo uniformemente aleatório.

2 MATERIAL E MÉTODOS

2.1 Descrições da Simulação

Foi simulada a reação simultânea de crescimento de duas fases distintas em uma mesma matriz. Foi utilizada a metodologia do autômato celular, para o crescimento das fases e vizinhança de von Neumann em 3D (seis vizinhos) base na regra de transição. O sistema estudado era contido por uma matriz cúbica de 304^3 células, e duas fases com as mesmas quantidades de núcleos iniciais, porém, velocidades distintas de crescimento. A fase um possui velocidade $G_1 = 1$ e a fase dois possui velocidade $G_2 = 2$, isto foi necessário para distinguir as fases dentro da matriz. O programa foi escrito em linguagem Fortran 2003, e compilado pelo Visual Studio 2010 ®. A visualização das microestruturas transformadas foi realizada com auxílio do programa Tecplot 360® versão 2010, a elaboração dos gráficos foi realizada com o auxílio do programa Wolfram Mathematica 8. Na entrada de dados da simulação foram escolhidos 64 núcleos para cada fase, com saturação de sítios (surgimento imediato no início da reação) para todos os grãos. Para simular uma amostra infinita foram utilizadas condições de contorno periódicas para todas as direções da matriz cúbica. O programa foi desenvolvido para apresentar como resultados de simulação: tempo de reação, fração volumétrica transformada, área superficial por unidade de volume, e velocidade de crescimento de cada fase. As grandezas podem ser obtidas no início meio e final da simulação, e são representadas em termos de reação total, e individualmente para cada fase.

2.2 Crescimento de Um Grão Isolado

Segundo Rios, J. de Oliveira, V. de Oliveira e Castro⁽⁷⁾ quando um único grão cresce de forma isolada, é possível encontrar expressões analíticas para o seu crescimento. As expressões a seguir são específicas para a vizinhança de von Neumann em 3D adotado nesta simulação. A origem do tempo, $t = 0$, corresponde a uma fração volumétrica igual à zero, $V_V = 0$. Portanto, o volume de um único grão, v , e sua área, s , em $t = 0$ é igual a:

$$v(0) = 0 \quad (1a)$$

$$s(0) = 0 \quad (1b)$$

Para $t \geq 1$ o volume de um único grão como uma função do tempo é:

$$v(t) = \frac{4}{3}(Gt)^3 - 2(Gt)^2 + \frac{8}{3}Gt - 1 \quad (2)$$

Esta equação não é válida para $t = 0$. Desconsiderando as potências de ordem inferior do tempo:

$$v(t) \cong \frac{4}{3}(Gt)^3 \text{ Unidades de volume} \quad (3)$$

A área de um único grão, s , para $t \geq 1$ é:

$$s(t) = 12(Gt)^2 - 12Gt + 6 \quad (4)$$

Mais uma vez, Desconsiderando as potências de ordem inferior do tempo:

$$s(t) \cong 12(Gt)^2 \text{ Unidade de área} \quad (5)$$

A velocidade global de crescimento, $\langle G \rangle$, pode ser calculada com a ajuda da equação de Cahn-Hagel⁽⁸⁾:

$$\langle G \rangle = \frac{\iint G ds}{\iint ds} = \frac{1}{s} \frac{dv}{dt} \quad (6)$$

Inserindo as equações 3 e 5 têm-se:

$$\langle G \rangle \cong \frac{1}{3} \text{ Unidades de comprimento / Unidade de tempo} \quad (7)$$

A velocidade global da interface é constante. Portanto, para um único grão a simulação foi capaz de produzir uma taxa de crescimento constante. Vale mencionar que o volume e a área de um único grão mostraram dependências de tempo diferente do que seria esperado do crescimento à velocidade constante. Neste caso foi possível usar apenas o termo líder, com maior potência do tempo. Uma situação similar foi encontrada em um trabalho de Rios, Oliveira JCPT, Oliveira VT, Castro⁽⁹⁾ na simulação de autômatos celulares 2D. Não é fácil dizer qual o efeito que uma escolha diferente de vizinhança ou de um critério de transição teria sobre esta dependência do tempo. Assim, simulações de autômatos celulares devem verificar isso.

2.3 Reações Simultâneas: Relação Entre Fração Volumétrica e Área Superficial Por Unidade de Volume

Nesta seção, as expressões derivadas na seção anterior para a evolução de um único grão foram usadas para obter expressões que contêm medições "globais", isto é, as medições médias, como a fração volumétrica e área de interface por unidade de volume, essas expressões estão de acordo com o novo método analítico desenvolvido por Rios e Villa⁽⁴⁾. As expressões calculadas foram comparadas com os resultados da simulação.

Suponha que existam duas reações simultâneas denotadas como reação 1 e 2. Cada reação tem sua velocidade própria, G_1 e G_2 , constante. A nucleação é por saturação de sítios em ambos, e os núcleos estão localizados aleatoriamente no espaço, o número de núcleos por unidade de volume é N_{V1} e N_{V2} , respectivamente. A Fração volumétrica (V_V) e a Quantidade de área interfacial entre a região recristalizada e a não recristalizada por unidade de volume (S_V) para fase 1 podem ser estimados por:

$$V_{V1}(t) = 1 - \exp\left(-\frac{4}{3}N_{V1}G_1^3t^3\right) \quad (8)$$

$$S_{V1}(t) = 4N_{V1}G_1^2t^2 \exp\left(-\frac{4}{3}N_{V1}G_1^3t^3\right) \quad (9)$$

Expressões análogas podem ser escritas para a reação 2 simplesmente pela troca de parâmetros de 1 para 2.

A Fração volumétrica teórica (V_V) total pode ser encontrada por:

$$V_V(t) = 1 - (1 - V_{V1}(t))(1 - V_{V2}(t)) \quad (10)$$

$$V_V(t) = 1 - \exp\left(-\frac{4}{3}(N_{V1}G_1^3 + N_{V2}G_2^3)t^3\right) \quad (11)$$

Os valores experimentais V_{V1}^* são calculados de acordo com a Equação 12 ou 13:

$$V_{V1}^*(t) = \int_0^t (1 - V_{V2}(s)) \frac{dV_{V1}(s)}{ds} ds \quad (12)$$

$$V_{V1}^*(t) = \int_0^t 4N_{V1}G_1^3 s^2 \exp\left(-\frac{4}{3}(N_{V1}G_1^3 + N_{V2}G_2^3)s^3\right) ds \quad (13)$$

Esta equação pode ser integrada analiticamente e simplificada resultando:

$$V_{V1}^*(t) = \frac{N_{V1}G_1^3}{N_{V1}G_1^3 + N_{V2}G_2^3} V_V(t) \quad (14)$$

Uma expressão análoga pode ser obtida para V_{V2}^* , considerando que $V_{V2}^* = V_V - V_{V1}^*$. Estas equações podem ser usadas para investigar o efeito da taxa de crescimento em uma transformação, quando todos os outros parâmetros são mantidos constantes.

A Quantidade de área interfacial entre material transformado e não transformado por unidade de volume (S_V) total pode ser encontrada por:

$$S_V(t) = 4(N_{V1}G_1^2 + N_{V2}G_2^2)t^2 \exp\left(-\frac{4}{3}(N_{V1}G_1^3 + N_{V2}G_2^3)t^3\right) \quad (15)$$

Então valores experimentais de S_{V1}^* podem ser calculados por:

$$S_{V1}^*(t) = \frac{N_{V1}G_1^2}{N_{V1}G_1^2 + N_{V2}G_2^2} S_V(t) \quad (16)$$

G também pode ser obtido por:

$$G = \frac{N_{V1}G_1^3 + N_{V2}G_2^3}{N_{V1}G_1^2 + N_{V2}G_2^2} \quad (17)$$

O caminho microestrutural da reação pode ser calculado associando-se a teoria de Vandermeer, Masumura, Rath⁽¹⁰⁾ à teoria de Rios e Villa⁽⁴⁾:

$$S_V(t) = (36)^{1/3} \frac{N_{V1}G_1^2 + N_{V2}G_2^2}{(N_{V1}G_1^3 + N_{V2}G_2^3)^{2/3}} (1 - V_V(t)) \left(\ln \frac{1}{(1 - V_V(t))}\right)^{2/3} \quad (18)$$

Vale ressaltar que o caminho microestrutural depende de G_1 e G_2 . Este comportamento é uma consequência específica das reações simultâneas. Segundo Vandermeer, Masumura, Rath⁽¹⁰⁾ que para uma reação com saturação de sítios o caminho microestrutural é independente da velocidade. De fato, para uma única reação, o caminho microestrutural é freqüentemente usado para estimar o número de núcleos por unidade de volume, como no trabalho de Vandermeer, Rath⁽¹¹⁾. Portanto, deve-se ter cuidado ao usar o caminho microestrutural para essa finalidade, se existe a possibilidade de reações simultâneas. Uma transformação particular em que isso poderia ser um problema é a recristalização. Se houver mais de um componente de textura com velocidades distintas, e se a transformação é analisada como se fosse uma única reação, então o número de núcleos estimado por unidade de volume vai nos fornecer valores errados.

Estas equações citadas mostram que, dadas as expressões teóricas para as duas reações, pode-se obter expressões para as quantidades experimentais totais. Reciprocamente dada expressões experimentais pode se obter expressões teóricas.

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

Como resultado foram obtidos gráficos construídos com dados a partir da simulação pelo Autômato Celular, que são representados por pontos e com dados previstos a partir das equações analíticas descritas a cima, que são representados por linhas sólidas. A fim de evitar sobrecarregá-los nem todos os pontos de simulação foram plotados. Com esses gráficos podemos então comparar os métodos.

Primeiramente apresentar-se-ão os gráficos de resultados de simulação de apenas uma das fases evoluindo dentro da matriz. Estes gráficos representam o que se chama de crescimento teórico, ou seja, sem qualquer outra fase impedindo o crescimento. A Figura 1 é a representação esquemática da microestrutura simulada para cada fase, em suas respectivas matrizes.

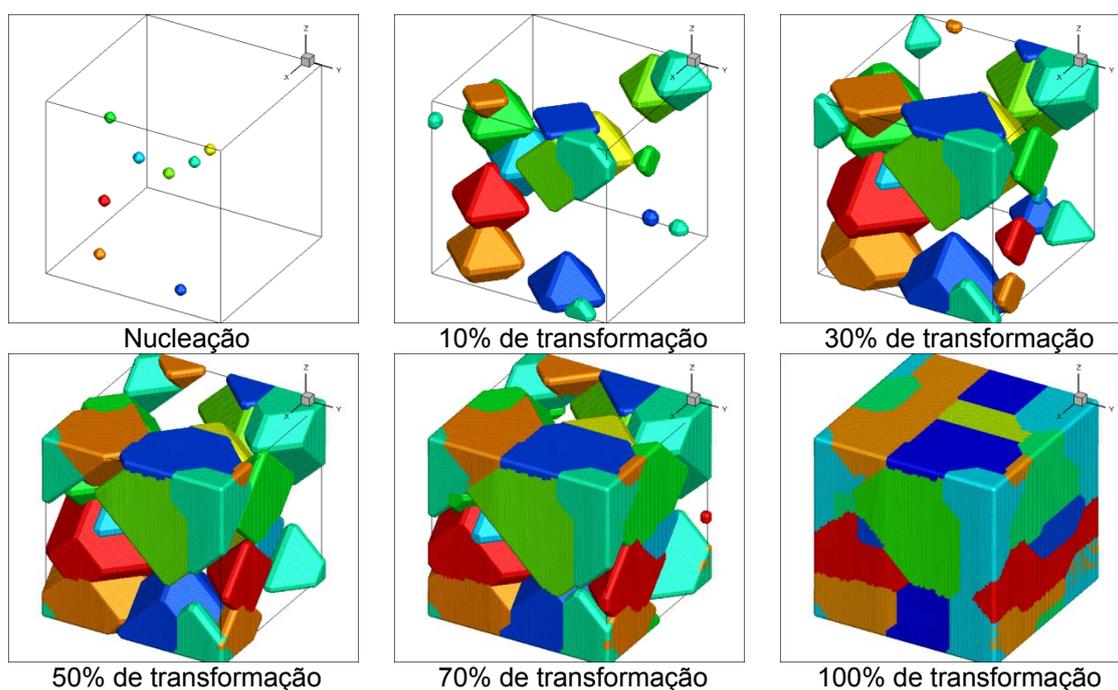


Figura 1. Microestrutura simulada, contendo apenas uma fase por microestrutura.

Nas microestruturas apresentadas na Figura 1, a reação ocorreu até a fase presente dominar toda a matriz pré-existente (transparente). Na Figura 2 nota-se uma excelente concordância entre as curvas de simulação computacional e as curvas do modelo analítico. É de suma importância ressaltar que, não houve qualquer tipo de ajuste de nenhuma variável. Todos os gráficos foram construídos diretamente com os resultados fornecidos pela simulação computacional.

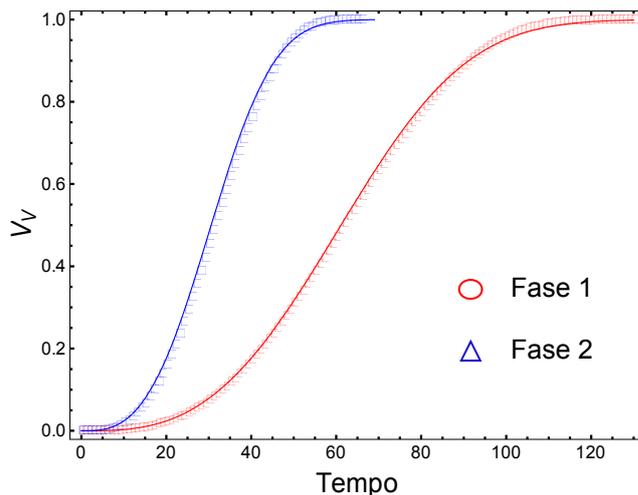


Figura 2. Cinética de evolução de duas fases distintas, porém, não simultâneas (cada uma em sua matriz).

Nota-se que, como a fase 2 tem uma maior velocidade de avanço das interfaces transformadas (é mais rápida), finaliza-se antecipadamente, como já era previsto. Durante o crescimento de cada fase a forma geométrica de crescimento (octaedral), foi mantida constante até o início do encontro das interfaces (*impingement*). Com auxílio da Figura 3 é possível observar exatamente o ponto no qual o *impingement* começa a ser significativo para a evolução microestrutural. O ponto máximo da curva representa o ponto onde se inicia a redução da área superficial por unidade de volume. Esta redução ocorre pela ausência de espaços livres para avanço das interfaces, desta forma, as interfaces começam a se encontrar, reduzindo assim o S_V entre regiões transformadas e não transformadas.

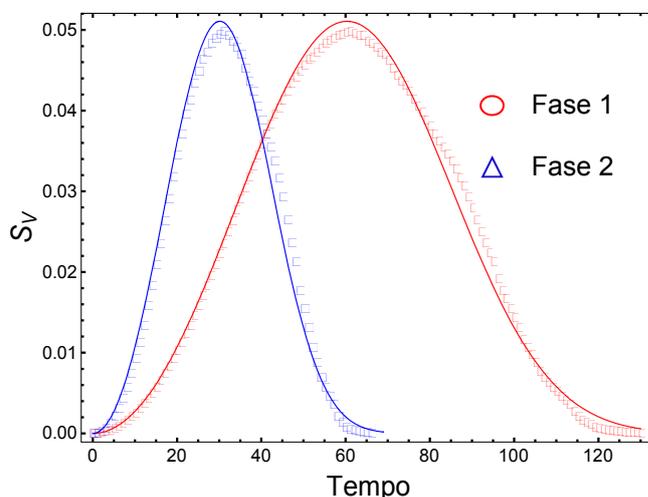


Figura 3. Área superficial por unidade de volume S_V versus tempo de transformação, não simultâneas (cada uma em sua matriz).

A Figura 4 apresenta as velocidades de cada fase, em cada matriz individualmente.

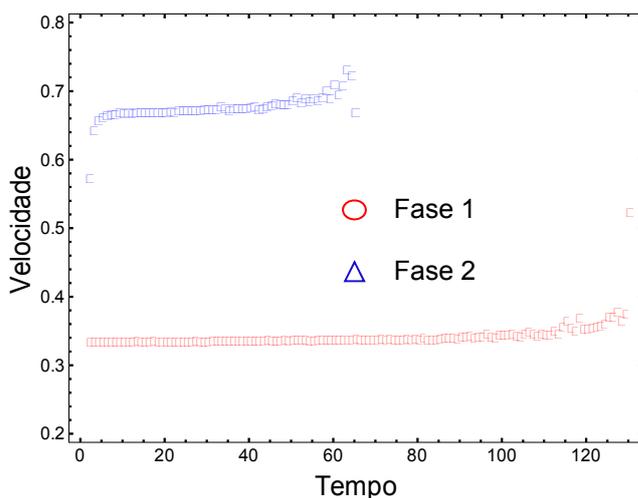


Figura 4. Velocidade de avanço das interfaces transformadas versus tempo de transformação, não simultâneas (cada uma em sua matriz).

Outro ponto a destacar é a constância na velocidade de crescimento, tendo a fase 2, o dobro da velocidade da fase 1. Todavia, as velocidades não alteram o caminho microestrutural da reação, desde que as formas geométricas sejam mantidas durante a reação. A afirmação da frase anterior pode ser confirmada visualizando-se a Figura 5.

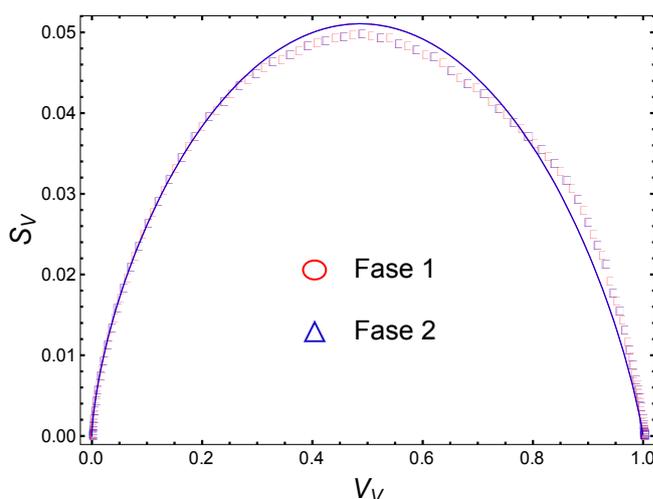


Figura 5. Área superficial por unidade de volume S_V versus fração volumétrica V_V , não simultâneas (cada uma em sua matriz).

Deste parágrafo em diante serão apresentados apenas resultados de reações simultâneas. Isto implica que, as fases cresçam simultaneamente dentro de uma mesma matriz até que ela esteja completamente transformada. A fim de evitar sobrecarregar os gráficos nem todos os pontos de simulação foram plotados. Foram utilizadas distribuição aleatória de núcleos iniciais tanto para a fase 1 quanto para a fase 2. A Figura 6 é a representação esquemática da microestrutura simulada.

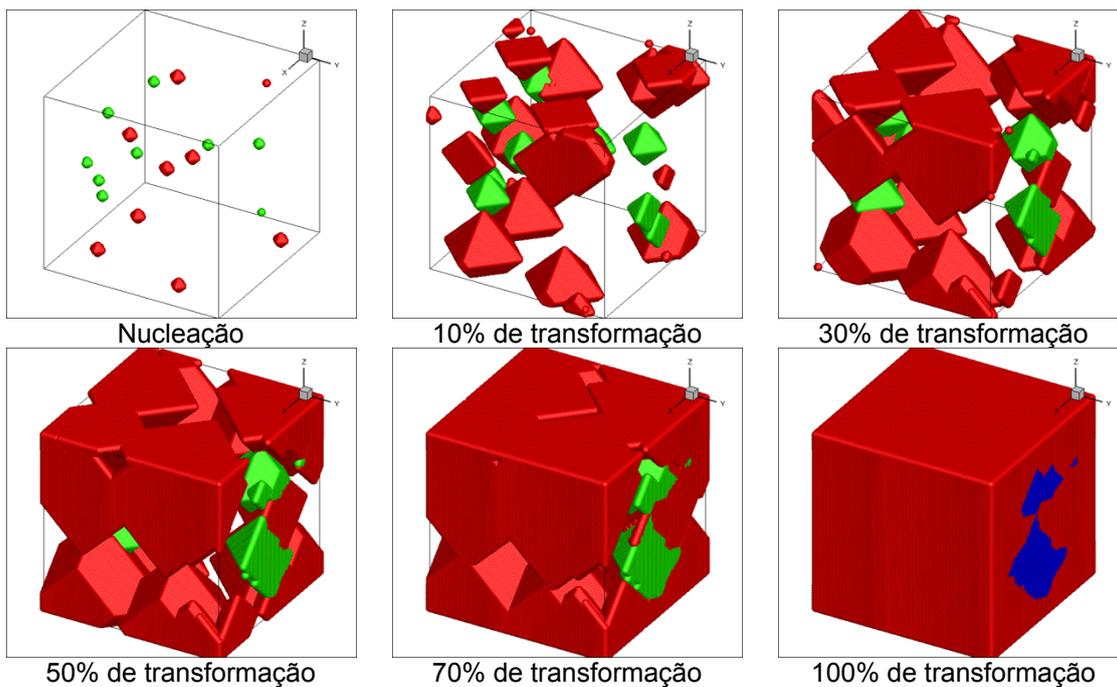


Figura 6. Microestrutura simulada da transformação simultânea, com nucleação aleatória para ambas as fases.

Na Figura 7 observa-se que a cinética de crescimento apresenta uma boa concordância entre a simulação computacional e a metodologia analítica de Rios e Villa⁽⁴⁾. A evolução microestrutural de cada fase pôde ser bem representada pelo método analítico.

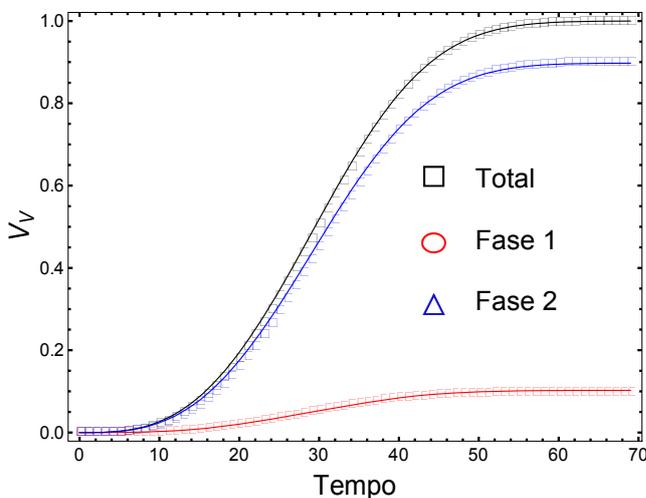


Figura 7. Cinética de evolução de duas fases crescendo simultaneamente versus tempo de transformação, com nucleação aleatória para ambas as fases.

Assim como foi observado na fração volumétrica transformada em função do tempo de reação, na Figura 8 houve uma boa concordância, entre as curvas de S_V simuladas e calculadas analiticamente.

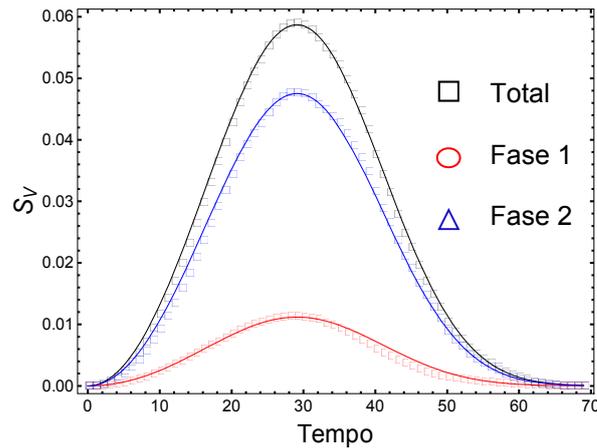


Figura 8. Área superficial por unidade de volume S_V versus tempo de transformação de duas fases crescendo simultaneamente, com nucleação aleatória para ambas as fases.

A partir das velocidades de cada fase e da velocidade da reação total mostradas na Figura 9, nota-se que, existe uma diferença perceptível entre cada uma delas. Observando-se apenas a velocidade global de reação, não é possível distinguir as fases, em relação à evolução microestrutural.

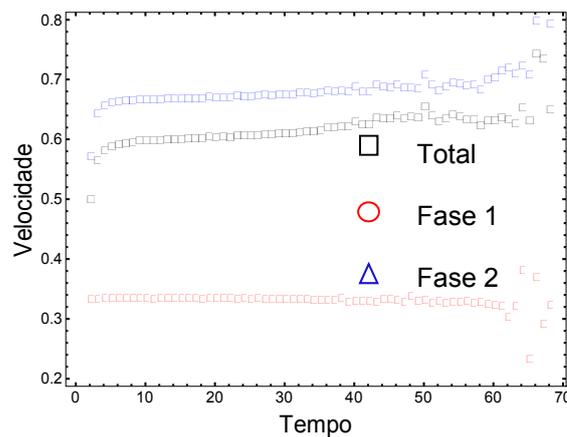


Figura 9. Velocidade de avanço das interfaces transformadas versus tempo de transformação de duas fases crescendo simultaneamente, com nucleação aleatória para ambas as fases.

Na Figura 10 observa-se que o caminho microestrutural apresenta uma ótima concordância entre a simulação e a metodologia analítica.

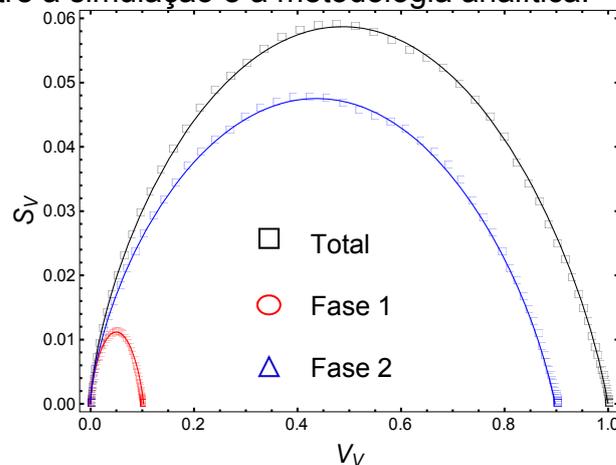


Figura 10. Área superficial por unidade de volume S_V versus fração volumétrica V_V de duas fases crescendo simultaneamente, com nucleação aleatória para ambas as fases.

4 CONCLUSÃO

Neste trabalho o autômato celular mostrou-se mais uma vez ser um método muito eficiente em simulação de transformações de fase. Foi possível simular com fidelidade os casos estudados analiticamente neste artigo. Todas as cinéticas de transformação apresentaram ótimas concordâncias com o modelo analiticamente exato de Rios e Villa⁽⁴⁾. Visualizando-se as curvas de caminho microestrutural pode-se concluir também que as formas geométricas foram mantidas ao longo da simulação. A reação mais rápida tem grande influência sobre a reação mais lenta. Quem controla a velocidade de reação é a reação mais rápida. Este fenômeno é atípico em reações sequencias ou simultâneas, que não ocorrem por nucleação e crescimento. Este fato se dá devido á fase mais lenta ser envolvida pela fase mais rápida, o que também explica a baixa fração volumétrica da fase lenta em relação á fase mais rápida.

Agradecimentos

Agradeço ao professor orientador Paulo Rangel Rios, e ao Doutor Wesley Luiz da Silva Assis por toda a assistência dada. A Universidade Federal Fluminense (UFF), juntamente com a Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado do Rio de Janeiro (FAPERJ) pela concessão da bolsa de iniciação científica a André Luiz Moraes Alves. Aos órgãos de Fomento: CNPQ, CAPES e FAPERJ.

REFERÊNCIAS

- 1 W. A. Johnson , R. F. Mehl: Trans AIME Vol. 135(1939) p. 416.
- 2 M. J. Avrami: Chem. Phys. Vol. 7(1939) p. 1103.
- 3 A. N. Kolmogorov: AN. Izv. Akad. Nauk. USSR-Ser. Matemat. Vol. 1(1937) p. 355.
- 4 P. R. Rios, E. Villa: Acta Mater. Vol. 58(2011) p. 2752.
- 5 Paulo R. Rios, Elena Villa, Simone C. de Oliveira. NEW METHODOLOGY TO MODEL SIMULTANEOUS AND SEQUENTIAL REACTIONS: MAIN RESULTS AND APPLICATIONS, Materials Science Forum Vols. 706-709 (2012) pp 149-156.
- 6 H. Magnusson, D. J. Jensen, B. Hutchinson: Scripta Mater. Vol.44(2001) p. 435.
- 7 P.R. Rios, J. de Oliveira, V. de Oliveira, J. de Castro, Cellular automata simulation of site-saturated and constant nucleation rate transformations in three dimensions, Mater. Res. 9 (2006) 223–230.
- 8 Cahn JW, Hagel W. Theory of the Pearlite Reaction. In: Zackay ZD, Aaronson HI, editors. Decomposition of austenite by Diffusional Processes. New York: Interscience; 1960.
- 9 Rios PR, Oliveira JCPT, Oliveira VT, Castro JA. Comparison of analytical models with cellular automata simulation of recrystallization in two dimensions. Materials Research. 2005; 8(3):341-345.
- 10 Vandermeer RA, Masumura RA, Rath B. Acta Metall Mater 1991;39:383.
- 11 Vandermeer RA, Rath BB. Metall Trans 1989;20A:391.